

Der Einfluß zeitlich fluktuierender Felder auf die Hyperfeinaufspaltung der Mößbauerstrahlung

Gabriel, Helmut

Veröffentlicht in:
Abhandlungen der Braunschweigischen
Wissenschaftlichen Gesellschaft Band 19, 1967,
S. 24-51



Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig

Der Einfluß zeitlich fluktuierender Felder auf die Hyperfeinaufspaltung der Mößbauerstrahlung¹⁾

Von Helmut Gabriel

Vorgelegt von Max Kohler

(Eingegangen am 23. 12. 1966)

Übersicht: Der Einfluß zeitlich-fluktuierender magnetischer Felder und elektrischer Feldgradienten auf die Hyperfeinaufspaltung der Mößbauerstrahlung wird untersucht. Die Überlegungen gelten für die Klasse von Experimenten, in denen die Umgebung des Atomkerns als Wärmebad wirkt und Ursache für die Entstehung effektiver *klassischer* Felder ist. Zur Lösung des Prozesses der spontanen Emission in einem entarteten Zweiniveausystem wird der Formalismus der Liouville-Operatoren benutzt. In zwei Schritten wird die Dichtematrix des Gesamtsystems „Kern + Strahlungsfeld + Umgebung“ so reduziert, daß ein Ausdruck für die Diagonalelemente der Dichtematrix für Kern und γ -Strahlung übrigbleibt. Über die physikalische Beschaffenheit der Kernumgebung werden keine speziellen Voraussetzungen gemacht. Deren Existenz findet sich in Korrelationsfunktionen bezüglich der felderzeugenden Störoperatoren wieder. Der Fall der magnetischen Dipolwechselwirkung in einem durch die magnetischen Dipolmomente und Kernspins charakterisierten Zweiniveausystem wird explizit behandelt. Die zeitlich-asymptotische Lösung, die für Meßdauern $t \gg 1/\Gamma, 1/\gamma$ gilt, führt auf eine Überlagerung frequenzverschobener Lorentzlinien mit modifizierter Linienbreite. Frequenzverschiebung Δ und zusätzliche Linienbreite γ der einzelnen Hyperfeinlinien sind explizit bekannte Funktionen der Kernspins, magnetischen Quantenzahlen und magnetischen Dipolmomente und hängen über die Feldkorrelationsfunktionen von der Umgebung ab.

Summary: The effect of time-fluctuating magnetic fields and electric field gradients on the hyperfine splitting of the Mössbauer radiation is investigated. The nucleus is considered as being imbedded in a heat bath causing classical effective fields. The problem of spontaneous emission of γ -radiation by a degenerate two-level system is treated with the formalism of Liouville operators. With the help of appropriate projectors, the density operator of the total system "nucleus + radiation field + surroundings" is reduced in two steps to an expression for the diagonal elements of the density operator of the system "nucleus + radiation field". The initially unspecified properties of the bath enter the theory through correlation functions defined in terms of the fluctuating fields. For a two-level system of given magnetic moments and spins of the nuclei, a long-time solution is derived for magnetic dipole interaction. For $t \gg 1/\Gamma, 1/\gamma$ the result is a superposition of frequency-shifted Lorentz lines with modified line width. The frequency shift Δ and the change in the line width γ of the various Mössbauer lines are obtained as functions of the nuclear spins, the magnetic quantum numbers, the magnetic moments, and of the correlation functions mentioned above.

I. Einleitung

Die Möglichkeit, mit Hilfe des Mößbauer-Effektes die Hyperfeinstruktur (Hfs) der Kernzustände zu messen, hat zu einem Zweig von Anwendungen geführt,

¹⁾ Als Habilitationsschrift genehmigt von der Naturwissenschaftlich-Philosophischen Fakultät der Technischen Hochschule Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig.

an dem Kernphysiker und Festkörperphysiker gleichermaßen interessiert sind. Quellen der Information für Kern- oder Festkörpereigenschaften sind im wesentlichen drei Effekte: die Isomerieverschiebung (die wir nicht betrachten), die elektrische Quadrupolaufspaltung und die magnetische Hfs-Aufspaltung. Zur Interpretation der gemessenen Multipletts geht man in fast allen Fällen von einer statischen Hfs-Wechselwirkung aus. Die experimentellen Ergebnisse lassen sich verstehen, wenn man zunächst von zwei extremen Standpunkten ausgeht.

1. Die Kernumgebung sei verantwortlich für die Erzeugung klassischer statischer elektromagnetischer Felder, die eventuell zusammen mit äußeren Feldern am Kernort wirken.
2. Nicht nur der betrachtete Kern, sondern noch der wesentliche — meist durch einen fiktiven Spin charakterisierte — Teilder zugehörigen Elektronenhülle ist als quantenmechanisches System anzusehen. Die Kristallumgebung beeinflusst die Energieeigenwerte und Eigenzustände dieses größeren Systems und wirkt zusätzlich als Relaxationsprozesse verursachendes Wärmebad.

Wir wollen uns in dieser Arbeit mit der Klasse von Mößbauerexperimenten beschäftigen, die sich durch am Kernort auftretende effektive Felder erklären lassen. Die Deutung der gemessenen effektiven Felder, die ihren Ursprung in den zum Kern gehörenden Elektronen, den Nachbaratomen, eventuell auch in den Leitungselektronen haben werden, ist ein Problem, das von der Quantentheorie der Festkörper gelöst werden muß und unsere Fragestellung nicht direkt angeht.

Wann dürfen wir von statischen Feldern sprechen, z. B. einem bestimmten effektiven Magnetfeld? Diese Frage stellte sich, als man dazu überging, die Hfs-Aufspaltung nicht nur in magnetisch geordneten Materialien (Ferro-, Antiferro- und Ferrimagnetika) mit ihren immer anwesenden starken inneren Feldern zu messen, sondern auch in paramagnetischen Stoffen.

Die Frage ist sinnvoll nur im Vergleich mit Zeitskalen, die für den γ -emittierenden Atomkern und die Beobachtbarkeit des Zeeman-Effekts charakteristisch sind. Das ist einmal die natürliche Linienbreite $\Gamma = \hbar/\tau$ oder mittlere Lebensdauer des angeregten Niveaus τ und für ein konstantes Magnetfeld B die Larmorumlaufzeit τ_B oder Larmorfrequenz ω_B . Die Bedingung [1] $\omega_B \tau \geq 2$ besagt, daß in einem Mößbauerexperiment das Zeemanmultiplett nur aufgelöst werden kann, wenn die (doppelte) natürliche Linienbreite kleiner als der Abstand der magnetischen Unterniveaus ist. Zu dieser Bedingung tritt nach Wertheim [2] (vgl. auch [3]) die Forderung $\omega_B t_c \geq 1$, die aussagt, daß zur Ausbildung der Zeeman-aufspaltung das Magnetfeld wenigstens während der Dauer eines Larmorumlaufes konstant bleiben sollte. Die Größe t_c steht für die Korrelationszeit der Elektronenspins oder magnetischen Momente der Elektronenhüllen, die für die Entstehung des Magnetfeldes am Kernort hauptsächlich verantwortlich sind. Die Experimente in paramagnetischen Materialien bestätigen dieses abschätzende Kriterium. Die Mößbauerspektren zeigen keine Hyperfeinstruktur, wenn die starken effektiven Magnetfelder (die lokalen effektiven Felder liegen bei paramagnetischen Ionen in der Größenordnung von $10^5 - 10^6$ G) infolge der Ankopplung des Elektronenspins an die Kristallumgebung während der Lar-

morumlaufzeit τ_B sehr rasch fluktuieren, da dann der Kern nur den verschwindenden Zeitmittelwert empfindet. Wir modifizieren das obige Kriterium, indem wir — wie es in der vereinfachten Theorie der paramagnetischen Resonanzen üblich ist — statt t_c zwei für die elektronische Relaxation charakteristische Zeiten einführen: die temperaturabhängige Spin-Gitter-Relaxationszeit t_{SG} und die temperaturunabhängige, dafür aber durch die Konzentration der magnetischen Ionen beeinflussbare Spin-Spin-Relaxationszeit t_{SS} . Durch Wahl der Versuchsbedingungen kann die Hfs-Aufspaltung erzeugt oder zum Verschwinden gebracht werden; z. B. kann man durch Abkühlen der Probe t_{SG} oder durch magnetische Verdünnung (etwa durch Einbau paramagnetischer Ionen in diamagnetische Gitter) t_{SS} vergrößern oder das System in umgekehrter Richtung beeinflussen. (Beispiele finden sich in den einschlägigen Monographien [4, 5] bzw. Konferenzberichten [6, 7].) Im entgegengesetzten Grenzfall $t_{SG}, t_{SS} \ll \tau, \tau_B$ empfindet der Kern den zeitlichen Mittelwert oder Ensemblemittelwert des Feldes, der im allgemeinen — zumindest ohne äußeres Magnetfeld — gleich Null sein wird. Dagegen wird für große Relaxationszeiten auch ohne äußeres Feld Hyperfeinstruktur auftreten. Ganz ähnliche Überlegungen gelten für die Quadrupolaufspaltung. Zu beachten ist lediglich, daß jetzt sogar bei extrem kurzen Relaxationszeiten Hfs-Aufspaltung beobachtet werden kann, wenn nämlich die im kristallelektrischen Feld aufgespaltenen Elektronenniveaus ungleich besetzt sind und dadurch ein elektrischer Feldgradient erzeugt wird.

In dem bisher Gesagten spiegelt sich der Einfluß fluktuierender elektrischer und magnetischer Felder auf die Mößbauerspektren nur in einer nützlichen, aber doch recht groben Fallunterscheidung wieder. In einer weiterführenden Mitteilung hat *Blume* [8] diskutiert, wie sich die Schwankungen der Umgebung oder Relaxationsvorgänge in paramagnetischen Ionen auf die Linienform auswirken. Als Beispiel beschreibt er die Modifikation des Quadrupoldoublets von Fe^{57} in einem in z-Richtung gelegenen elektrischen Feldgradienten unter der Annahme, daß die Hf-Wechselwirkung durch ein gleichorientiertes Magnetfeld vermittelt wird. Die paramagnetische Relaxation äußert sich in seinem Modell in einer stochastischen Richtungsumkehr des Feldes. Einzelheiten der Theorie sind bisher nicht veröffentlicht, Andeutungen finden sich bei *Boyle* und *J. R. Gabriel* [9]. Unter denselben Annahmen bezüglich des Relaxationsvorganges haben *van der Woude* und *Dekker* [3] den Zusammenhang zwischen den magnetischen Eigenschaften eines Festkörpers und der Form der Mößbauerspektren behandelt. Diese stochastischen Theorien der Linienform haben zweifellos den Vorteil, daß sie sich nach Vorgabe bestimmter Parameter mathematisch exakt (meist nur numerisch) behandeln lassen. Unbefriedigend jedoch ist die übermäßige Vereinfachung des Relaxationsmodells.

Von der eben geschilderten Betrachtungsweise abweichend haben *Wegener* [10] und *Bradford* und *Marshall* [11] den Einfluß einer zeitlich schwankenden Hf-Wechselwirkung berücksichtigt. *Wegener* geht aus von der Schrödingergleichung für die Wellenfunktionen des Gesamtsystems Kern im Strahlungsfeld und Hüllenspin. Im Anteil des Hamiltonoperators für den das effektive Magnetfeld verursachenden Hüllenspin wird neben der Zeemanwechselwirkung mit einem konstanten äußeren Feld ein zeitabhängiger Operator eingeführt, der in nicht näher festgelegter Weise die Wechselwirkung mit der Umgebung beschreibt

und dessen Anwesenheit sich im Ergebnis in Schwanungsintegralen für das innere Magnetfeld niederschlägt. Nach Elimination des elektronischen Anteils aus dem Hamiltonoperator und Ersetzung durch ein zeitabhängiges Zusatzmagnetfeld am Kernort wird der Emissionsprozeß in Weisskopf-Wigner-Näherung behandelt.

Bradford und *Marshall* wenden eine von *Kubo* und *Tomita* in der Theorie der magnetischen Resonanzabsorption entwickelte Störungsrechnung auf die rückstoßfreie Kernresonanzabsorption an. Sie spezialisieren von vornherein auf magnetische Dipolstrahlung für den $\left(\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right)$ -Übergang in Fe^{57} und setzen im Hf-Wechselwirkungsterm den exakten zeitabhängigen Heisenbergoperator für den Hüllenspin ein. Die elektronischen Spinkorrelationsfunktionen werden durch Annahme eines Relaxationsmodells mit exponentieller Zeitabhängigkeit $\exp(-t/\tau_R)$ approximiert. Die Spektralverteilung läßt sich dann mit einigen zusätzlichen Rechenvereinfachungen bestimmen.

Die Wirkung zeitlich-veränderlicher effektiver Felder auf die Mößbauerspektren zu berechnen, ist auch das Ziel der vorliegenden Arbeit. Angestrebt wurde eine Form der Theorie, die sich auf alle beim Mößbauereffekt interessierenden Kernübergänge anwenden läßt und in der möglichst wenig Voraussetzungen über spezielle Eigenschaften der Kernumgebung gemacht werden. Dadurch erhält die Theorie notwendigerweise einen sehr formalen Charakter. Anwendungen auf besonders interessante Experimente (z. B. [12]) bleiben späteren Arbeiten vorbehalten.

In den Abschnitten II und III erläutern wir ausführlich das verwendete Modell und das Verfahren zur formalen Lösung des Problems. Der folgende Abschnitt IV beschäftigt sich mit der spontanen Emission. Er dient der Herleitung eines Näherungsausdrucks für die Spektralverteilung der emittierten γ -Strahlung.

II. Das Modell

Wir gehen aus von einer Anzahl von Atomkernen, die durch Präparierung zum Zeitpunkt $t = 0$ alle im angeregten Zustand vorliegen sollen und anschließend durch spontane Emission *rückstoßfrei* in den Grundzustand übergehen. Wir wollen für dieses idealisierte Experiment, bei dem alle Fragen ausgeschaltet werden, die mit der gitterdynamischen Theorie des Mößbauereffektes zusammenhängen, die mögliche Auswirkung anderer Wechselwirkungen im Gesamtsystem kurz erörtern.

1. Die Wechselwirkung des emittierenden Kerns mit den am Kernort effektiv auftretenden konstanten und zeitlich schwankenden Magnetfeldern bzw. elektrischen Feldgradienten steht im Mittelpunkt unserer Überlegungen. Eine qualitative Diskussion dieser Einflüsse findet sich bereits in der Einleitung.
2. Gegenüber der Wechselwirkung mit der umgebenden Matrix dürfen wir die direkte Kopplung der Kernspins aneinander (Dipol-Dipol-Wechselwirkung) in den meisten Fällen als klein vernachlässigen. Diese Annahme wirkt sich auf die statistische Beschreibung des Gesamtsystems aus, wie wir gleich sehen werden.

3. Die für die elektromagnetischen Übergänge und das Auftreten der natürlichen Linienbreite verantwortliche Wechselwirkung des Kerns mit dem Strahlungsfeld $H_{\gamma k}$ wird in der üblichen Weise störungstheoretisch berücksichtigt. Dabei wird es genügen, die experimentell gut bestätigte Weisskopf-Wigner-Näherung zur Berechnung der natürlichen Linienbreite zu verwenden.
4. Die Wechselwirkung des Strahlungsfeldes mit der Kristallumgebung und damit die indirekte Kopplung an den γ -emittierenden Atomkern K ist ein Effekt höherer Ordnung und kann vernachlässigt werden.

Wegen der unter 1. und 3. genannten Kopplungen der Kerne an das Strahlungsfeld und die Kristallumgebung ist es in Strenge nicht mehr richtig, von stationären Zuständen des Atomkerns zu sprechen. Zu einer adäquaten Beschreibung des Gesamtsystems brauchen wir den statistischen Operator oder Dichteoperator W . Für eine Gesamtheit von Mößbauerkernen in äquivalenter Umgebung genügt die Kenntnis eines einzigen Dichteoperators. Der in vielen Experimenten praktisch verwirklichte Fall, daß sich die Kerne in N nicht gleichwertigen Kristallumgebungen befinden (z. B. auf Gitterplätzen verschiedener Symmetrie oder in Legierungen unterschiedlich umgeben von den Atomen der Legierungspartner) erfordert die Berechnung von N Dichteoperatoren W_α und die volle statistische Gesamtheit wird durch eine zusätzliche Mittelung über die Untergesamtheiten

$$\overline{W} = \frac{1}{N} \sum_{\alpha=1}^N W_\alpha \quad (1)$$

beschrieben. Hier ist die als Punkt 2 genannte Wechselwirkungsfreiheit zwischen den Kernen wesentlich verwendet. Die W_α gehorchen den Bewegungsgleichungen ($\hbar = 1$)

$$i \frac{\partial W_\alpha}{\partial t} = [H^z, W_\alpha] \quad \alpha = 1, 2, \dots, N \quad (2)$$

mit

$$H^z = H_{0K} + H_\gamma + H_{\gamma K} + H_R^\alpha + H_{RK}^\alpha \quad (3)$$

H_{0K} : Hamiltonoperator eines freien Kerns in einem äußeren konstanten Magnetfeld

H_γ : Hamiltonoperator des freien Strahlungsfeldes

$H_{\gamma K}$: Wechselwirkungsoperator Kern-Strahlungsfeld

H_R^α : Hamiltonoperator des Badsystems α (α -Umgebung)

H_{RK}^α : Wechselwirkungsoperator des Kerns mit der α -Umgebung.

Um die Schreibweise zu vereinfachen, wollen wir von nun an den Index α weglassen und eine der N Untergesamtheiten studieren. Bei Anwendung auf Kerne in nichtgleichwertigen Umgebungen muß man $H_R^\alpha + H_{RK}^\alpha$ spezialisieren und die Mittelung (1) beachten.

Nur die ersten drei der in (3) eingehenden Hamiltonoperatoren sind von vornherein als explizit bekannt anzusehen. Allerdings muß man sich vor Augen

halten, daß nur im Falle eines konstanten Magnetfeldes bzw. axialsymmetrischen elektrischen Feldgradienten der ungestörte Hamiltonoperator \hat{H}_{0K} exakt diagonalisierbar ist.

Die Zustände des Kerns — wir dürfen uns bei Mößbauerexperimenten auf ein Zweiniveausystem bestehend aus angeregtem Kernniveau und Grundzustand beschränken — sind dann durch Zustandsvektoren $|\tau jm\rangle$ charakterisierbar. (Die neben dem Kernspin j und der magnetischen Quantenzahl m auftretende Quantenzahl τ vervollständigt in der Standard-Darstellung $\{j^2, j_z\}$ die Menge der Eigenvektoren zu einem vollständigen System. Wir nehmen an, daß die beiden Kernniveaus durch Angabe der zugehörigen Kernspins eindeutig charakterisiert sind und lassen τ deshalb zukünftig fort!)

Um die Theorie bis zu einem gewissen Stadium möglichst frei von speziellen Annahmen über die Umgebung und die Wechselwirkung mit dem Kern zu halten, wollen wir H_R zunächst gar nicht festlegen und von H_{RK} , das bezüglich des Drehverhaltens ein irreduzibler Tensoroperator nullter Stufe ist, nur verlangen, daß es sich in der Form

$$H_{RK} = \sum_k \sum_{q=-k}^{+k} (-)^q T_q^{(k)}(K) U_{-q}^{(k)}(R) \quad (4)$$

schreiben läßt, also als Skalarprodukt von Tensoroperatoren (zur Schreibweise und den Eigenschaften der Tensoroperatoren s. *Messiah* [13], S. 1075ff.) k -ter Stufe, die jeweils auf den Hilbertraum der Zustandsvektoren des Kerns und des Badsystems oder Reservoirs wirken. Am Beispiel der statischen Wechselwirkung der Kernmomente mit Magnetfeldern bzw. elektrischen Feldgradienten oder anders ausgedrückt magnetischer Hyperfein- bzw. Quadrupolwechselwirkung können wir uns die Art der Kopplung der Umgebung an den Kern veranschaulichen. Die Beschränkung der Summation auf die Werte $k = 1, 2$ stammt aus der Erfahrung, daß fast durchweg nur die magnetische Dipol- bzw. elektrische Quadrupolwechselwirkung mit extranuklearen Feldern wichtig ist. Später werden wir uns auf den Fall magnetischer Wechselwirkung beschränken, um die Formeln nicht allzu unübersichtlich werden zu lassen.

Auf einen letzten wichtigen Punkt dieses Abschnitts kommen wir jetzt zu sprechen. Gegenüber denen eines einzelnen Kerns ist die Zahl der Freiheitsgrade der Kristallumgebung sehr groß. Abweichungen vom thermischen Gleichgewicht oder anders ausgedrückt lokale Erwärmungen der Kernumgebung werden sehr schnell abgebaut, und es ist deshalb erlaubt, die Umgebung als ein Gleichgewichtssystem anzusehen, quantenstatistisch beschrieben etwa durch eine kanonische Verteilung

$$\varrho_T(R) = Z_R^{-1} e^{-\beta H_R}, \quad Z_R = \text{Tr}_R e^{-\beta H_R}, \quad \beta = 1/kT. \quad (5)$$

Jeder Kern befindet sich nach dieser Vorstellung in einem Badsystem oder Wärmereservoir (daher der Index R). Die erste Aufgabe wird es nun sein, aus dem statistischen Operator \bar{W} oder $W_\alpha \equiv W$ die für unser Experiment *wesentliche* Information herauszuholen, also Aussagen über Kern und Strahlungsfeld, und den Ballast des Nicht-Beobachteten zu eliminieren. Dazu bietet sich ein Verfahren an, das von *Zwanzig* [14] in der statistischen Theorie der Nichtgleich-

gewichtsvorgänge ausgiebig verwendet wurde. Durch geeignet gewählte Projektionsoperatoren, die im Raum der Dichteoperatoren wirken, läßt sich die Bewegungsgleichung (2) in „relevante“ und „irrelevante“ Bestandteile zerfallen. Wir werden das Verfahren im nächsten Abschnitt mathematisch beschreiben.

Durch die eben beschriebene Reduktion erhält man eine Bewegungsgleichung für den auf das Teilsystem Kern + Strahlungsfeld reduzierten Dichteoperator. Bei Streichung des Operators der Wechselwirkung zwischen Kern und Photonen und H_γ entspricht unser Modell in den wesentlichen Zügen den Vorstellungen, die der Theorie der magnetischen Kernrelaxation zugrunde liegen (*Wangsness* und *Bloch* [15], *Hubbard* [16]).

Von einer Annahme über fehlende Korrelationen zwischen Wärmebad und K - γ -System für $t \leq 0$ und den Anfangsbedingungen, die bei der Integration der Bewegungsgleichung des reduzierten Dichteoperators gebraucht werden und die durch die künstlich eingeführte Präparierung des Systems hereinkommen, befreit man sich durch Aufsuchen einer zeitlich asymptotischen Näherung.

III. Das Verfahren zur Herleitung der formalen Lösung

Das von *Zwanzig* verwendete Verfahren ist eine Kombination des Formalismus der Projektionsoperatoren mit der Liouville-Darstellung von Gesamtheiten quantenmechanischer Systeme. Der Liouvilleoperator L ist ein dem betrachteten Hamiltonoperator H und der Kommutatorbildung zugeordneter (Super-) Operator¹⁾, definiert durch

$$i \frac{\partial W}{\partial t} = [H, W] = L W. \quad (6)$$

L ist ein im Raum der Dichteoperatoren wirkender hermitescher linearer Operator, dessen Matrixdarstellung durch Vergleich mit dem ihn definierenden Kommutator leicht gefunden werden kann:

$$L_{kl,mn} = H_{km} \delta_{ln} - \delta_{mk} H_{nl} \quad (7)$$

Einheitstetrade (Matrixdarstellung des Liouville-Einsoperators):

$$1_{kl,mn} = \delta_{km} \delta_{ln}.$$

An Stelle der Multiplikation gewöhnlicher Matrizen tritt das Multiplikationsgesetz:

$$A_{kl,mn} = \sum_{i,j} B_{kl,ij} C_{ij,mn}.$$

Wir beschaffen uns einen Projektionsoperator \mathcal{P} , der die gewünschte Zerlegung von W in für eine bestimmte physikalische Fragestellung wesentliche und unwesentliche Bestandteile W_1 und W_2 leistet:

$$\begin{aligned} W &= \mathcal{P} W + (1 - \mathcal{P}) W \equiv W_1 + W_2 \\ \mathcal{P}^2 &= \mathcal{P}, \quad \mathcal{P} (1 - \mathcal{P}) = 0. \end{aligned} \quad (8)$$

¹⁾ L bildet Operatoren auf Operatoren ab, daher die genauere Bezeichnung Superoperator (*Primas* [17]).

Wenn H nicht explizit von der Zeit abhängt, erhält man durch Laplace-Transformation \mathcal{L} und Anwendung der Projektion \mathcal{P} bzw. $1 - \mathcal{P}$ auf (6) mit (8) zwei gekoppelte Gleichungen im Bildraum:

$$\begin{aligned} p W_1(p) - W_1(t=0) &= -i\mathcal{P}L\{W_1(p) + W_2(p)\} \\ p W_2(p) - W_2(t=0) &= -i(1 - \mathcal{P})L\{W_1(p) + W_2(p)\}, \end{aligned}$$

deren Auflösung nach W_1 und W_2 trivial ist; z. B. folgt für den relevanten Teil $W_1 = \mathcal{P}W$ die formale Lösung:

$$\begin{aligned} W_1(p) &= \left[p + i\mathcal{P}L + \mathcal{P}L \frac{1}{p + i(1 - \mathcal{P})L} (1 - \mathcal{P})L \right]^{-1} \\ &\times \left\{ W_1(t=0) + \frac{1}{p + i(1 - \mathcal{P})L} W_2(t=0) \right\}, \end{aligned} \quad (9)$$

wofür durch Anwendung der Umkehrtransformation \mathcal{L}^{-1}

$$\mathcal{L}^{-1} W_1(p) = \frac{1}{2\pi i} \int_{e-i\infty}^{e+i\infty} dp e^{pt} W_1(p)$$

und mit Hilfe des Faltungssatzes für das Produkt der \mathcal{L} -Transformierten $f_1(p) = \mathcal{L}F_1(t)$ und $f_2(p) = \mathcal{L}F_2(t)$

$$f(p) = f_1(p)f_2(p); \quad F(t) = F_1(t) * F_2(t) = \int_0^t F_1(\tau) F_2(t - \tau) d\tau \quad (10)$$

sofort eine Differentialgleichung für $W_1(t)$ hingeschrieben werden kann:

$$\begin{aligned} \frac{dW_1(t)}{dt} &= -i\mathcal{P}LW_1(t) - i\mathcal{P}Le^{-it(1-\mathcal{P})L}W_2(t=0) \\ &- \int_0^t d\tau \mathcal{P}L e^{-i\tau(1-\mathcal{P})L} (1 - \mathcal{P})L W_1(t - \tau), \end{aligned} \quad (11)$$

falls dies erwünscht ist. In vielen Fällen wird man Umformungen der formalen Lösung im Bildraum vornehmen, oft ist es aber einfacher, vorübergehend in den Originalraum zurückzukehren.

Spezielle Projektionsoperatoren, die unserem Problem angepaßt sind, werden ebenfalls von Zwanzig angegeben (s. dazu [14] und Fano [18]). Wir werden die nötige Reduktion in zwei Schritten vornehmen:

1. durch Beschränkung auf eine als Wärmereservoir wirkende Umgebung vermittelt durch den Projektor

$$P = \varrho_T(R) Tr_R \quad (12)$$

worin Tr_R Spurbildung im Reservoirsystem bedeutet und

2. durch Auswahl der Diagonalelemente des so reduzierten Dichteoperators vermittelt durch einen Projektor D .

Die Operation 1 ist die mathematische Fixierung des im vorhergehenden Abschnitt über die Kernumgebung Gesagten. Der Sinn der Operation 2 ist klar,

wenn wir uns erinnern, daß die Diagonalterme des auf das $K\gamma$ -System reduzierten Dichteoperators Auskunft über die Besetzungswahrscheinlichkeit der verschiedenen Zustände der Gesamtheit geben.

1. Schritt, $\mathcal{P} \triangleq P$

Es ist zweckmäßig, den zum Hamiltonoperator (3) gehörenden totalen Liouvilleoperator L

$$L = (L_{0K} + L_\gamma + L_{\gamma K}) + (L_R + L_{RK}) \quad (13)$$

dadurch zu modifizieren, daß der Ensemblemittelwert der Wechselwirkung des Kerns mit dem Wärmebad

$$\langle L_{RK} \rangle_R = \text{Tr}_R(L_{RK} \varrho_T(R)) \quad (14)$$

zur ersten Klammer hinzugezählt und von L_{RK} wieder abgezogen wird:

$$L = L' + L'' \quad (15)$$

mit

$$L' = L_{0K} + \langle L_{RK} \rangle_R + L_\gamma + L_{\gamma K} \quad (16a)$$

$$L'' = L_R + L_{RK} - \langle L_{RK} \rangle_R = L_R + \Delta L_{RK}. \quad (16b)$$

Dadurch wird der statische Wechselwirkungsbeitrag von vornherein beim ungestörten Hamiltonoperator berücksichtigt, während andererseits in einer bei Anwendungen fast immer erforderlichen Störungstheorie, nach den *Abweichungen* des Wechselwirkungsoperators L_{RK} vom Ensemblemittelwert $\langle L_{RK} \rangle_R$ und nicht nach L_{RK} selbst entwickelt wird. Die Operatoren L' und L'' haben folgende wichtige Eigenschaften:

$$PL' = L'P$$

$$PL''P = 0 \quad (17)$$

$$PL''Q = PL'' \text{ mit } Q = 1 - P$$

wie in Anhang A bewiesen wird. Die Ensemblemittelwertbildung ist bis auf den als Faktor auftretenden Gleichgewichtsoperator $\varrho_T(R)$ identisch mit der Anwendung des speziellen Projektors (12). Man beachte, daß Bildungen wie (14) oder (17) immer noch Liouvilleoperatoren sind, die per def. auf alle Größen wirken, die rechts von ihnen auftreten werden.

Durch die Spezialisierung $\mathcal{P} \equiv P$ wird mit Hilfe von (17) und der Abkürzung

$$\varrho_1(k, \gamma; t) = \text{Tr}_R W(R, K, \gamma; t) \text{ in } PW = \varrho_T(R) \varrho_1(K, \gamma) \quad (18)$$

$$\varrho_T(R) \frac{d\varrho_1(t)}{dt} = -i\varrho_T(R) L' \varrho_1(t) \quad (19)$$

$$- \int_0^t d\tau \varrho_T(R) \text{Tr}_R \{ L e^{-i\tau Q L} Q L \varrho_T(R) \} \varrho_1(t - \tau).$$

Wir haben zur Vereinfachung der Bewegungsgleichung zusätzlich angenommen, daß zum Zeitpunkt $t = 0$ der totale statistische Operator $W(R, \gamma, K)$ als (direktes) Produkt

$$W(R, \gamma, K; t = 0) = \varrho_T(R) \varrho_1(K, \gamma; t = 0)$$

gegeben ist, d. h. das $K\gamma$ -System vom Wärmereservoir für $t \leq 0$ völlig entkoppelt war.

Der Nachwirkungsterm auf der rechten Seite von (19) läßt sich wesentlich vereinfachen, wenn man sich die Exponentialfunktion entwickelt denkt und wiederholt von (17) und $PQ = 0$ Gebrauch macht.

Lassen wir noch den überflüssigen Faktor $\varrho_T(R)$ fort, so entsteht aus (19) als Zwischenresultat

$$\frac{d\varrho_1(t)}{dt} = -iL'\varrho_1(t) - \int_0^t d\tau \text{Tr}_R \{L'' e^{-i\tau QL} Q L'' \varrho_T(R)\} \varrho_1(t - \tau)$$

und im nächsten Schritt wegen:

$$L_R \varrho_T(R) = [H_R, \varrho_T(H_R)] = 0$$

und

$$\text{Tr}_R L_R X(R, K) = \text{Tr}_R [H_R, X(R, K)] = 0^1)$$

die gesuchte Beziehung:

$$\frac{d\varrho_1(K, \gamma; t)}{dt} = -iL'\varrho_1(t) - i \int_0^t d\tau M(\tau) \varrho_1(t - \tau) \quad (20)$$

$$M(t) = -i \langle \Delta L_{RK} e^{-itQL} Q \Delta L_{RK} \rangle_R. \quad (21)$$

Der Integralterm mit dem Liouvilleoperator M ist bereits von zweiter Ordnung in der Wechselwirkung zwischen Kern und Umgebung, wodurch ein besonders bequemer Ausgangspunkt für eine störungstheoretische Behandlung spezieller Probleme gegeben ist.

Die Bewegungsgleichung (20) zeigt, daß die Wechselwirkung des Kerns mit der Umgebung allgemein nicht durch einen irgendwie angenommenen (z. B. stochastischen) zeitabhängigen Hamiltonoperator $H_{\text{ext.}}(t)$ beschrieben werden kann, wie dies z. B. Coester [19] bei der Behandlung der gestörten Winkelkorrelationen und auch Wegener [10] in seinem Modell zur Beschreibung der Elektronenspinfluktuationen tut.

Allerdings sind Bewegungsgleichungen vom nicht-markoffschen Typ — wie der Gl. (20) strukturell ähnliche Differentialgleichungen in der physikalischen Literatur zur statistischen Mechanik irreversibler Prozesse genannt werden — meist nicht auflösbar. Uns interessiert auch gar nicht die Frage, wie gut bei bestimmten physikalischen Problemen die Annahme zutrifft, daß sich die Umgebung durch einen zeitlich instantanen Liouville-Störoperator bemerkbar macht. Der Vorteil unseres Vorgehens, die Umgebung als eigenes quantenmechanisches System durch einen vorläufig nicht näher festgelegten Hamiltonoperator H_R in Wechselwirkung mit dem Kern zu beschreiben, zeigt sich anhand des Nachwirkungsgliedes in der wohldefinierten Vorschrift, nach der die resultierende Wechselwirkung zwischen Kern + Strahlungsfeld und Wärmebad zu berechnen ist.

¹⁾ Ist $X(R) \in \mathfrak{R}$, so haben wir nur die bekannte Eigenschaft der zyklischen Invarianz der Spurbildung vor uns. Die obige Behauptung gilt aber tatsächlich auch für $X(R, K) \in \mathfrak{R} \otimes \mathfrak{R}$, wie man etwa in der Eigendarstellung von H_R elementar beweisen kann. Mit \mathfrak{R} und \mathfrak{R} bezeichnen wir die beiden Teilräume der entkoppelten Systeme.

2. Schritt: $\mathcal{P} \triangleq D$

Der statistische Operator $\varrho_1(K, \gamma)$ enthält immer noch mehr Information als wir benötigen. Wir erkennen dies deutlich, wenn wir die Bedingungen übernehmen, die bei der spontanen Emission von *Weisskopf* und *Wigner* angenommen wurden. Zur Zeit $t = 0$ seien alle Mößbauerkerne im angeregten Zustand und das Strahlungsfeld enthalte keine Photonen.

Der Dichteoperator $\varrho_1(t = 0)$ besitzt also in der Eigendarstellung der ungestörten Hamiltonoperatoren $H_{0K} + H_\gamma$ nur Diagonalelemente. Durch Messung wird zu einem späteren Zeitpunkt festgestellt, daß einige Kerne des Ensembles je ein γ -Quant¹⁾ mit bestimmter Ausbreitungsrichtung emittiert haben. Die Wahrscheinlichkeit, das K - γ -System in diesem bestimmten Zustand vorzufinden, liefert uns das zugehörige Diagonalelement von $\varrho_1(K, \gamma)$. Folglich brauchen wir wieder nur die Kenntnis der Diagonalglieder des Dichteoperators, um den Vorgang der spontanen Emission zu analysieren. In den meisten Fällen interessieren nur Zeiten $\Gamma t \gg 1$ ($1/\Gamma$ mittlere Lebensdauer des angeregten Niveaus). Als Maß für die pro Zeiteinheit auftretende Änderung der Wahrscheinlichkeit, den Endzustand $|j_g m_g; 1_{\mathbf{k}\sigma}\rangle$ (Kern im Grundzustand charakterisiert durch Kernspin j_g und dessen z -Komponente m_g + ein Photon der Ausbreitungsrichtung \mathbf{k} mit der Polarisation σ) anzutreffen, definieren wir:

$$w(\mathbf{k}, \sigma) = \sum_{m_g} \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\langle j_g m_g; 1_{\mathbf{k}\sigma} | \varrho_1(t) - \varrho_1(t = 0) | j_g m_g; 1_{\mathbf{k}\sigma} \rangle}{t}. \quad (22)$$

In (22) ist über die möglichen Endzustände zu summieren, wenn durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes oder durch das Einwirken innerer Felder die Hyperfeinstrukturaufspaltung gemessen wird.

Schreiben wir uns jetzt die Laplace-Transformierte der Bewegungsgleichung (20) auf, nämlich

$$p \varrho_1(p) - \varrho_1(t = 0) = -i(L' + M(p)) \varrho_1(p), \quad (24)$$

dann läßt sich das gewünschte Ergebnis sofort ohne Rechnung aus (9) durch folgende Spezialisierung

$$\mathcal{P} \equiv D; \quad \varrho(K, \gamma) \equiv D \varrho_1(K, \gamma)$$

$$L \equiv L' + M(p) \text{ mit } M(p) = \mathcal{L} M(t)$$

ablesen. Im Bildraum sind die Diagonalglieder des Dichteoperators durch die formale Operatorgleichung

$$\begin{aligned} \varrho(p) = [p + iD\{L' + M(p)\} + D\{L' + M(p)\}] \frac{1}{p + i(1 - D)\{L' + M(p)\}} \\ \times (1 - D)\{L' + M(p)\}^{-1} \varrho(t = 0) \end{aligned} \quad (25)$$

gegeben, wenn man berücksichtigt, daß nach Voraussetzung die Dichtematrix zum Zeitpunkt $t = 0$ diagonal sein soll. Es ist offensichtlich unmöglich, durch Umkehrung der Laplace-Transformation $\varrho(t)$ exakt zu berechnen. Aber es wäre von der physikalischen Fragestellung her gar nicht sinnvoll, diese mathematische Aufgabe überhaupt anzugehen. Wir wissen, daß wir uns zur Beschreibung

¹⁾ Wir beschränken uns auf Einphotonenzustände.

der elektromagnetischen Strahlungsübergänge eines freien Kerns auf die Störungstheorie zweiter Ordnung in $H_{\gamma K}$ beschränken dürfen. Daran ändert sich auch für einen Kern nichts, der in einen Kristall eingebaut ist. Der Hamiltonoperator $H_{\gamma K}$ ist übrigens der einzige, der zu Übergängen zwischen den Kernniveaus führt. Durch die Wechselwirkung mit der Umgebung können aus energetischen Gründen allenfalls Übergänge zwischen den durch wirksame Felder aufgespaltenen Unterniveaus induziert werden. Die Energiedifferenzen zwischen Zeeman-Niveaus sind um viele Zehnerpotenzen kleiner ($\sim 10^{-11}$ mal bei $\sim 10^5$ G für Fe^{57}) als die γ -Energie. Wir beschränken uns deshalb bei der Entwicklung der Resolvente in (25) auf Glieder, die höchstens von zweiter Ordnung in $L_{\gamma K}$ und linear in M sind (M ist nach (21) bereits von zweiter Ordnung in ΔL_{RK}). Es ist konsequent, dann auch gemischte Glieder $L_{\gamma K}M$, $L^2_{\gamma K}M$ usw. wegzulassen. So entsteht

$$\varrho(p) = \left\{ \frac{1}{p} 1 - \frac{1}{p^2} \left[iD(L' + M(p)) + DL' \frac{1}{p + i(1-D)\{L' + M(p)\}} \right. \right. \\ \left. \left. \times (1-D)L' \right] \right\} \varrho(t=0) \quad (26)$$

(1 = Einheitsoperator im Liouvillerraum).

Anstelle von (16a) schreiben wir besser

$$L' = L_0 + L_{\gamma K} \text{ mit } L_0 = L_{0K} + L_{\gamma} + \langle L_{RK} \rangle_R. \quad (27)$$

Wie im Anhang B bewiesen wird, gilt allgemein für beliebige L'

$$DL'D = 0 \quad (28)$$

und darüber hinaus bei Verwendung einer Darstellung, worin der zu L_0 gehörige Hamiltonoperator diagonal ist:

$$DL_0 = L_0D = 0. \quad (29)$$

Dadurch vereinfacht sich (26) wesentlich:

$$\varrho(p) = \frac{1}{p} \varrho(t=0) - \frac{1}{p^2} \left[iDM(p) + DL_{\gamma K} \frac{1}{p + i(1-D)\{L' + M(p)\}} \right. \\ \left. \times (1-D)L_{\gamma K} \right] \varrho(t=0). \quad (30)$$

Das zweite Glied in der eckigen Klammer enthält die zur Beschreibung elektromagnetischer Strahlungsübergänge wichtige Information. Wir interessieren uns speziell für den Prozeß der spontanen Emission. Geben wir zur Zeit $t=0$ eine Dichtematrix vor, die nur von Null verschiedene Diagonalelemente bezüglich des Anfangszustandes der Gesamtheit hat und fragen wir zu einem Zeitpunkt $\Gamma t \gg 1$ nach dem Endzustand, so vermittelt der in $L_{\gamma K}$ quadratische Anteil gerade diesen Übergang. Genau unter diesen Bedingungen liefert der erste Term in der eckigen Klammer einen verschwindenden Beitrag, was evident ist, da der Operator M — zumindest in unserer Näherung — keine Kernübergänge hervorrufen kann.

Wir wollen den Zwischenoperator $[p + i(1-D)(L' + M)]^{-1}$, der für die Spektralverteilung der emittierten γ -Quanten verantwortlich ist, weiter vereinfachen. Mit Hilfe der in Anhang C bewiesenen Identität:

$$\begin{aligned}
\frac{1}{p + i(1-D)\{L' + M\}} &= \left\{ (1-D) \frac{1}{p + i(L' + M)} + \frac{D}{p} \right\} \\
&\times \frac{1}{1 - \frac{1}{p} (1-D)(L' + M) D(L' + M) \frac{1}{p + i(L' + M)}} \\
&\simeq \frac{D}{p} + (1-D) \frac{1}{p + i(L' + M)} + O(L_{\gamma K}, M)
\end{aligned} \quad (31)$$

können wir den Projektionsoperator $(1-D)$ im Nenner beseitigen, da der letzte Quotient durch den Einsoperator ersetzt werden darf. Der Summand D/p verschwindet beim Einsetzen in (30) wegen $D(1-D) = 0$. Zerlegen wir die im Nenner auftretenden Operatoren in Diagonal- und Nichtdiagonalteil:

$$L' + M = (L_0^{(d)} + L_{\gamma K}^{(d)} + M^{(d)}) + (L_0^{(nd)} + L_{\gamma K}^{(nd)} + M^{(nd)}), \quad (32)$$

eine Operation, die nicht mit der Anwendung des D - bzw. $(1-D)$ -Projektors verwechselt werden sollte, da in Matrixschreibweise

$$(L^{(d)})_{kl,mn} = \delta_{km} \delta_{ln} L_{kl,kl} \quad (33)$$

$$(L^{(nd)})_{kl,mn} = (1 - \delta_{km} \delta_{ln}) L_{kl,mn}$$

hingegen z. B.

$$(DL)_{kl,mn} = \delta_{kl} L_{kk,mn}$$

bedeutet. Die Projektion D führten wir ein, um die Diagonalelemente im Raum der Dichteoperatoren zu isolieren, während die durch den oberen Index d bezeichnete Operation den Diagonalteil eines Operators im Liouvillerraum herausucht. Wir wissen von vornherein, daß in der Eigendarstellung von H_0 $L_{\gamma K}^{(d)} = 0$ und $L_0^{(nd)} = 0$ sind.

Es ist bekannt, daß eine analoge Zerlegung der Resolvente

$$R = \frac{1}{p + i(L' + M)} = R^{(d)} + R^{(nd)} \quad (34)$$

in unserer Näherung durch (s. Anhang D)

$$R^{(d)} = \frac{1}{p + iL_0 + G^{(d)} + iM^{(d)}} \quad (35)$$

$$G^{(d)} = \left[L_{\gamma K} \frac{1}{p + iL_0} L_{\gamma K} \right]^{(d)} \quad (36a)$$

gegeben ist. $R^{(nd)}$ führt zu Gliedern höherer Ordnung in den Störoperatoren. Zur Bildung des Diagonalteils von $M(p)$ ist an Stelle der Definition (21) von

$$M(p) = \mathcal{L} M(t) \simeq -i \mathcal{L} \langle \Delta L_{RK} e^{-itQ(L_0 + L_R)} Q \Delta L_{RK} \rangle_R \quad (36b)$$

auszugehen. Wir können diesen wichtigen Term so umformen, daß die auf das Kernsystem wirkenden Operatoren und der zum Wärmebad gehörige Anteil faktorisiert werden. Ordnen wir den irreduziblen Tensoroperatoren $T_q^{(k)}$ die Liouvilleoperatoren $L_q^{(k)}$ zu:

$$L_q^{(k)} X(K) = [T_q^{(k)}, X(K)] \quad (37)$$

und bezeichnen wir mit $L_q^{(k)+}$ den zum Antikommutator gehörigen Operator

$$L_q^{(k)+} X(K) = [T_q^{(k)}, X(K)]_+, \quad (38)$$

dann läßt sich folgende Identität beweisen:

$$\begin{aligned} \langle \Delta L_{RK} e^{-it(L_0 + L_R)} Q \Delta L_{RK} \rangle_R &= \sum_{k,q} \sum_{k',q'} L_q^{(k)} e^{-itL_0} \\ &\times \frac{1}{2} (-)^{q+q'} \left\{ \langle [u_{-q}^{(k)}(t), u_{-q'}^{(k')}(0)]_+ \rangle_R L_{q'}^{(k')} + \langle [u_{-q}^{(k)}(t), u_{-q'}^{(k')}(0)] \rangle_R L_{q'}^{(k')} \right\}. \end{aligned} \quad (39)$$

Beim Übergang von (36) zu (39) haben wir noch die Beziehung $\exp(\alpha Q L_R) = \exp(\alpha L_R)$ benutzt und für die Badoperatoren (vgl. (4) und 16b))

$$u_{-q}^{(k)} \equiv U_{-q}^{(k)} - \langle U_{-q}^{(k)} \rangle_R \quad (40)$$

zeitabhängige Heisenbergoperatoren

$$e^{itL_R} u_{-q}^{(k)} = e^{itH_R} u_{-q}^{(k)} e^{-itH_R} = u_{-q}^{(k)}(t) \quad (41)$$

eingeführt.

Wir definieren Korrelationsfunktionen

$$C_{kq}^{k'q'}(t) = \frac{1}{2} (-)^{q+q'} \langle [u_{-q}^{(k)}(t), u_{-q'}^{(k')}(0)]_+ \rangle_R = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega J_{kq}^{k'q'}(\omega) e^{-i\omega t} \quad (42a)$$

$$D_{kq}^{k'q'}(t) = \frac{1}{2} (-)^{q+q'} \langle [u_{-q}^{(k)}(t), u_{-q'}^{(k')}(0)] \rangle_R = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega K_{kq}^{k'q'}(\omega) e^{-i\omega t} \quad (42b)$$

und deren Fouriertransformierte $J_{kq}^{k'q'}(\omega)$ und $K_{kq}^{k'q'}(\omega)$.

Als Folge der Selbstadjungiertheit der irreduziblen Tensoroperatoren (Def. nach *Racah*)

$$u_q^{(k)+} = (-)^q u_{-q}^{(k)}$$

und der Eigenschaft $\langle u(t)v(0) \rangle_R = \langle u(0)v(-t) \rangle_R$ des Ensemblemittelwerts lassen sich folgende Beziehungen herleiten:

$$\begin{aligned} J_{kq}^{k'q'}(\omega)^* &= (-)^{q+q'} J_{k,-q}^{k',-q'}(-\omega) = (-)^{q+q'} J_{k',-q'}^{k,-q}(\omega) \\ K_{kq}^{k'q'}(\omega)^* &= (-)^{q+q'+1} K_{k,-q}^{k',-q'}(-\omega) = (-)^{q+q'} K_{k',-q'}^{k,-q}(\omega). \end{aligned} \quad (42c)$$

Im Spezialfall $k = k'$, $-q = q'$ sind die Fouriertransformierten der Korrelationsfunktionen alle reell.

Begriffsbildungen der eben beschriebenen Art sind in der statistischen Mechanik der irreversiblen Prozesse wohlbekannt. Zwischen der Spektralzerlegung der Fluktuationen im Gleichgewichtsensemble $J_{kq}^{k'q'}(\omega)$ und der Fouriertransformierten des Kommutators $K_{kq}^{k'q'}(\omega)$ besteht — wie wir ohne Beweis angeben — der

in der irreversiblen Thermodynamik als Fluktuations-Dissipationstheorem bekannte Zusammenhang:

$$K_{kq}^{k'q'}(\omega) = \tanh \frac{\beta\omega}{2} J_{kq}^{k'q'}(\omega) \quad (\hbar = 1!). \quad (42d)$$

Aus (36b) erhalten wir nach Einsetzen von (42) in (39) im Bildraum:

$$iM(p) = \frac{1}{\pi} \sum_{k,q} \sum_{k',q'} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega L_q^{(k)} \frac{1}{p + i\omega + iL_0} \\ \times \left\{ J_{kq}^{k'q'}(\omega) L_{q'}^{(k')} + K_{kq}^{k'q'}(\omega) L_{q'}^{(k')} \right\}. \quad (43)$$

Dieser Ausdruck und die aus (30) hervorgehende Gleichung

$$\varrho(p) = \frac{1}{p} \varrho(t=0) - \frac{1}{p^2} \left[iDM(p) + DL_{\gamma K}(1-D) \right. \\ \left. \times \frac{1}{p + iL_0 + iM^{(d)} + \left\{ L_{\gamma K} \frac{1}{p + iL_0} L_{\gamma K} \right\}^{(d)}} (1-D)L_{\gamma K} \varrho(t=0) \right] \quad (44)$$

ist Ausgangspunkt für alles Folgende.

IV. Der Prozeß der spontanen Emission

A. Der ungestörte Fall: $M=0$. Die natürliche Linienbreite

Die Matrixform des Liouvilleformalismus wird für ein nichtentartetes Zweiniveausystem besonders durchsichtig, deshalb beginnen wir mit diesem einfachen Beispiel. Wir bezeichnen die beiden diskreten Eigenzustände des Kerns mit $|a\rangle$ und $|g\rangle$ und kennzeichnen Matrixelemente bezüglich Null- bzw. Einphotonenzuständen durch Indizes 0 bzw. λ, κ, \dots . Die Photonenzahl $\hat{\lambda}$ steht abkürzend für das Quadrupel (\mathbf{k}, σ) . Das freie Strahlungsfeld $H_\gamma = \sum_{\lambda} \omega_{\lambda} \hat{n}_{\lambda}$ trägt bei Beschränkung auf höchstens Einphotonenzustände nur Energien $n_{\lambda} \omega_{\lambda}$ ($n_{\lambda} = 0$ oder 1) bei; die Kernniveaus haben Energien ω_a bzw. ω_g . Wie bereits erwähnt, wollen wir die spontane Emission mit den Anfangsbedingungen $\varrho_{a0,a0}(t=0) = \langle a; 0 | \varrho(t=0) | a; 0 \rangle \neq 0$ (alle anderen Matrixelemente des Dichteoperators gleich Null zur Zeit $t=0$) behandeln. Aus (44) erhalten wir mit (7) und dem Multiplikationsgesetz für Tetraden durch Umkehrung der Laplace-transformation

$$\varrho_{g\lambda g\lambda}(t) = - \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \sum_{\substack{k,\kappa \\ m,\mu}} (L_{\gamma K})_{g\lambda g\lambda, k\kappa m\mu} \mathcal{L}_{t_2}^{-1} \{ \overline{R}^{(d)} \}_{k\kappa m\mu, k\kappa m\mu} \\ (L_{\gamma K})_{k\kappa m\mu, a0a0} \varrho_{a0a0}(t=0) \quad (45) \\ = | \langle a; 0 | H_{\gamma K} | g; \lambda \rangle |^2 \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \mathcal{L}_{t_2}^{-1} \\ \{ \overline{R}_{a0g\lambda, a0g\lambda}^{(d)} + \overline{R}_{g\lambda a0, g\lambda a0}^{(d)} \} \varrho_{a0a0}(t=0).$$

Wir benutzen jetzt die Operatorentwicklung

$$\frac{1}{A+B} = \frac{1}{A} \left[1 - B \frac{1}{A+B} \right] = \frac{1}{A} \sum_{\nu=0}^{\infty} \left(-B \frac{1}{A} \right)^{\nu}, \quad (46)$$

um die Resolvente durch sukzessive Anwendung des Faltungssatzes in den Originalraum zu transformieren:

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_t^{-1} \bar{R}^{(d)} &\equiv \mathcal{L}_t^{-1} \left[\frac{1}{p + iL_0 + \left\{ L_{\gamma K} \frac{1}{p + iL_0} L_{\gamma K} \right\}^{(d)}} \right] \\ &= \mathcal{L}_t^{-1} \left[\frac{1}{p + iL_0} \sum_{\nu=0}^{\infty} \left(- \left\{ L_{\gamma K} \frac{1}{p + iL_0} L_{\gamma K} \right\}^{(d)} \frac{1}{p + iL_0} \right)^{\nu} \right] \\ &= e^{-iL_0 t} \left[1 - \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 e^{i(t_1-t_2)L_0} \{ L_{\gamma K} e^{-i(t_1-t_2)L_0} L_{\gamma K} \}^{(d)} + \right. \\ &\quad + \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \int_0^{t_2} dt_3 \int_0^{t_3} dt_4 e^{i(t_1-t_2+t_3-t_4)L_0} \{ L_{\gamma K} e^{-i(t_1-t_2)L_0} L_{\gamma K} \}^{(d)} \\ &\quad \left. \times \{ L_{\gamma K} e^{-i(t_3-t_4)L_0} L_{\gamma K} \}^{(d)} + \dots \right]. \end{aligned} \quad (47)$$

Wir dürfen die diagonalen Operatoren $\exp(\alpha L_0)$ mit den ebenfalls diagonalen Operatorfunktionen $\{ L_{\gamma K} \exp(\beta L_0) L_{\gamma K} \}^{(d)}$ vertauschen. Für das erste Doppelintegral $A(t)$ in der eckigen Klammer von (47) finden wir mit der Abkürzung

$$\omega_{a0,g\lambda} = (\omega_a - \omega_g) - \omega_{\lambda} = \omega_{ag} - \omega_{\lambda}$$

die Matrixdarstellung

$$\begin{aligned} A_{a0g\lambda, a0g\lambda}(t) &= \sum_{\substack{k, \kappa \\ m, \mu}} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 e^{i(t_1-t_2)(\omega_{a0,g\lambda} - \omega_{\kappa\mu})} (L_{\gamma K})_{a0g\lambda, k\kappa m\mu} (L_{\gamma K})_{k\kappa m\mu, a0g\lambda} \\ &= \sum_{\kappa} \left[\frac{t}{-i\omega_{g\kappa, a0}} + \frac{e^{i\omega_{g\kappa, a0}t} - 1}{(i\omega_{g\kappa, a0})^2} \right] \cdot |\langle g; \kappa | H_{\gamma K} | a; 0 \rangle|^2 = A_{g\lambda a0, g\lambda a0}^*. \end{aligned}$$

Bedenkt man, daß $\sum \kappa$ nicht nur eine Summation über die Polarisationsrichtungen des Photons, sondern noch eine Integration über das quasikontinuierliche Spektrum des Strahlungsfeldes bedeutet, so lassen sich für große Zeiten folgende Vereinfachungen anbringen [20]. Der oszillierende Term liefert keinen Beitrag; das zeitunabhängige Glied muß gestrichen werden, da es zu Korrekturen höherer als zweiter Ordnung in $H_{\gamma K}$ in der Übergangswahrscheinlichkeit führen würde. Das mit t lineare Glied teilen wir mit Hilfe der Identität

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{+\infty} f(v) \frac{dv}{-iv} &= \pi \int_{-\infty}^{+\infty} f(v) \delta_+(v) dv \\ \pi \delta_+(v) &= \pi \delta(v) + i H W \left(\frac{1}{v} \right) \end{aligned} \quad (48)$$

in Real- und Imaginärteil auf. Die mit dem Hauptintegral verknüpfte Energieverschiebung ist praktisch bedeutungslos und wird deshalb vernachlässigt. Der Realteil von $A_{a0g\lambda, a0g\lambda}(t)$ liefert die bekannte Formel für die natürliche Linienbreite

$$\operatorname{Re} A_{a0g\lambda}(t) \simeq \frac{t}{2} \Gamma_{ag} = \frac{t}{2} \Gamma_{ga} \equiv \pi t \sum_{\kappa} |\langle g; \kappa | H_{\gamma K} | a; 0 \rangle|^2 \delta(\omega_{a0, g\kappa}). \quad (49)$$

In analoger Weise lassen sich die höheren Terme von (47) behandeln. Aus (47) wird asymptotisch¹⁾

$$\mathcal{L}_t^{-1} \bar{R}_{a0g\lambda, a0g\lambda}^{(d)} \simeq e^{-i\omega_{a0, g\lambda} t} \cdot e^{\operatorname{Re} A_{a0g\lambda, a0g\lambda}} = e^{-(i\omega_{a0, g\lambda} + \Gamma_{ag}/2)t}. \quad (50)$$

Damit lassen sich die Zeitintegrale in (45) leicht ausrechnen:

$$\begin{aligned} \varrho_{g\lambda g\lambda}(t) = |\langle g; \lambda | H_{\gamma K} | a; 0 \rangle|^2 & \left\{ \frac{t}{i\omega_{a0, g\lambda} + \Gamma_{ag}/2} + \frac{e^{-(i\omega_{a0, g\lambda} + \Gamma_{ag}/2)t} - 1}{(i\omega_{a0, g\lambda} + \Gamma_{ag}/2)^2} + \right. \\ & \left. + \text{konj.-kompl.} \right\} \varrho_{a0a0}(t). \end{aligned} \quad (51)$$

Wenden wir (22) auf unser einfaches Beispiel an, so erhalten wir:

$$\bar{w}(\mathbf{k}, \sigma) = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\varrho_{g\lambda g\lambda}(t)}{t} = |\langle g; \lambda | H_{\gamma K} | a; 0 \rangle|^2 \frac{\Gamma_{ag} \varrho_{a0a0}(t=0)}{(\omega_{ag} - \omega_{\lambda})^2 + (\Gamma_{ag}/2)^2}. \quad (52)$$

Die Verallgemeinerung auf Strahlungsübergänge zwischen entarteten Niveaus erreichen wir in bekannter Weise durch Mittelung über die $(2j_a + 1)$ Anfangszustände und Summation über die $(2j_g + 1)$ Endzustände. Mit der sich dann ergebenden natürlichen Linienbreite

$$\Gamma = 2\pi \sum_{m_a, m_g, \kappa, \sigma} \frac{1}{2j_a + 1} |\langle m_g; 1_{\kappa\sigma} | H_{\gamma K} | m_a; 0 \rangle|^2 \delta(\omega_{m_a m_g} - \omega_{\mathbf{k}}) \quad (53)$$

haben wir es im folgenden zu tun. Sind zur Zeit $t = 0$ alle magnetischen Unterniveaus gleich besetzt, so ist

$$\langle j_a m_a' | \varrho(t=0) | j_a m_a \rangle = \varrho_{m_a' m_a}(t=0) = \frac{1}{2j_a + 1} \delta_{m_a' m_a},$$

und wir erhalten für (22) im ungestörten Fall

$$w(\mathbf{k}, \sigma) = \sum_{m_a, m_g} \frac{1}{2j_a + 1} |\langle m_g; 1_{\kappa\sigma} | H_{\gamma K} | m_a; 0 \rangle|^2 \frac{\Gamma}{(\omega_{m_a m_g} - \omega_{\mathbf{k}})^2 + (\Gamma/2)^2}. \quad (54)$$

Die Spektrallinien haben Lorentzform.

Wie unser Beispiel zeigt, können wir den Einfluß des Strahlungsfeldes einfach dadurch berücksichtigen, daß wir den Operator $\left\{ L_{\gamma K} \frac{1}{p + iL_0} L_{\gamma K} \right\}^{(d)}$ in der Resolvente durch $\frac{\Gamma}{2} \cdot 1$ ersetzen.

¹⁾ Bezeichnet man für den Augenblick den Kopplungsparameter zwischen Kern und Strahlungsfeld mit ϵ , so ist eine Asymptotik im Sinne der schwachen Kopplung gemeint: $t \rightarrow \infty$, $\epsilon \rightarrow 0$, aber $\epsilon^2 t = \text{konst.}$

B. Der Einfluß der Umgebung auf das γ -Spektrum

Der Fall $M \neq 0$

Für den Fall magnetischer Wechselwirkung des Kerns mit der Umgebung und einem eventuell vorhandenen äußeren Feld wählen wir als Quantisierungsachse die Richtung des totalen Feldes. Den zu (29) gehörenden Hamiltonoperator

$$H_0 = H + H_{0K}(\mathbf{B}) + \langle H_{RK} \rangle_R \quad (55)$$

vereinfachen wir, indem wir die Zeeman-Wechselwirkung

$$\langle H_{RK} \rangle_R = \sum_{q=-1}^{+1} (-)^q T_q^{(1)} \langle U_{-q}^{(1)} \rangle_R \equiv -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}_i$$

des Kerns mit dem inneren Magnetfeld \mathbf{B}_i durch Einführung des effektiven Feldes

$$\mathbf{B}_{\text{eff}} = \mathbf{B} + \mathbf{B}_i \quad (56)$$

in $H_{0K}(\mathbf{B}_{\text{eff}})$ berücksichtigen. Die z -Komponente des Dipolmomentoperators führen wir durch

$$\mu_z \equiv T_0^{(1)} \quad (57a)$$

ein, damit ist das magnetische Moment per def. durch

$$\mu_j = \langle jj | \mu_z | jj \rangle \quad (57b)$$

gegeben und der Tensoroperator $U^{(1)}$ ist bis auf das Vorzeichen gleich dem Magnetfeldoperator.

$H_{0K}(\mathbf{B}_{\text{eff}})$ ist diagonal in der $|jm\rangle$ -Darstellung. Wir bezeichnen die Zeeman-Multipletts durch E_{jm} . Diese Energien gehen in die Abkürzungen

$$\begin{aligned} \omega_{jm\lambda, j'm'\lambda'} &= E_{jm\lambda} - E_{j'm'\lambda'} \\ E_{jm\lambda} &= E_{jm} + \omega_\lambda \\ E_{jm0} &= E_{jm} \end{aligned} \quad (58)$$

ein. Zum Indizieren von Operatoren im Liouvillerraum brauchen wir jetzt vier Tripel von Quantenzahlen $(jm\lambda)$.

Zur Auswertung von (44) benötigen wir — wie in IV. A. — die Beziehungen

$$\begin{aligned} (L_0)_{jm\lambda j'm'\lambda', j_1 m_1 \lambda_1 j_2 m_2 \lambda_2} &= \omega_{jm\lambda, j'm'\lambda'} \delta_{jm\lambda, j_1 m_1 \lambda_1} \delta_{j'm'\lambda', j_2 m_2 \lambda_2} \\ (L_{\gamma K})_{jm\lambda j'm'\lambda', j_1 m_1 \lambda_1 j_2 m_2 \lambda_2} &= \langle jm; \lambda | H_{\gamma K} | j_1 m_1; \lambda_1 \rangle \delta_{j'm'\lambda', j_2 m_2 \lambda_2} \\ &\quad - \delta_{jm\lambda, j_1 m_1 \lambda_1} \langle j_2 m_2; \lambda_2 | H_{\gamma K} | j' m'; \lambda' \rangle. \end{aligned}$$

Die Matrixelemente von $H_{\gamma K}$ sind nur dann von Null verschieden, wenn j und j_1 bzw. j' und j_2 zu verschiedenen Kernniveaus j_a oder j_g gehören. Um die Auswahlregeln für Multipolübergänge wollen wir uns vorerst nicht kümmern.

Durch Reihenentwicklung beweist man sofort, daß für jeden diagonalen Operator

$$\left(\frac{1}{p + i_z A^{(d)}} \right)_{jm\lambda j'm'\lambda', j_1 m_1 \lambda_1 j_2 m_2 \lambda_2} = \frac{\delta_{jm\lambda, j_1 m_1 \lambda_1} \delta_{j'm'\lambda', j_2 m_2 \lambda_2}}{p + i_z A^{(d)}_{jm\lambda j'm'\lambda', jm\lambda j'm'\lambda'}} \quad (59)$$

richtig ist. Die Bedeutung der zusammengesetzten Kroneckersymbole ist

$$\delta_{jm\lambda, j_1m_1\lambda_1} = \delta_{jj_1} \delta_{mm_1} \delta_{\lambda\lambda_1}.$$

Unter Berücksichtigung der Anfangsbedingung

$$\langle j_a m_a; 0 | \varrho(t=0) | j_a m_a; 0 \rangle \neq 0,$$

alle anderen Diagonalelemente von $\varrho(t=0) = 0$ ergibt sich für ein Zweiniveausystem aus (44):

$$\begin{aligned} & \langle j_g m_g; 1_{k\sigma} | \varrho(p) | j_g m_g; 1_{k\sigma} \rangle \equiv \varrho_{m_g \lambda}(p) \\ &= -\frac{1}{p^2} \sum_{\substack{j_m, \lambda \\ j', m', \lambda'}} (L_{\gamma K})_{j_g m_g \lambda, j_g m_g \lambda, j_m \lambda j' m' \lambda'} R_{j_m \lambda j' m' \lambda', j_m \lambda j' m' \lambda'}^{(d)} \\ & \quad \times (L_{\gamma K})_{j_m \lambda j' m' \lambda', j_a m_a 0, j_a m_a 0} \varrho_{m_a 0}(t=0) \\ &= \frac{1}{p^2} \sum_{m_a} |\langle j_g m_g; \lambda | H_{\gamma K} | j_a m_a; 0 \rangle|^2 \{ R_{j_g m_g \lambda, j_a m_a 0, j_g m_g \lambda, j_a m_a 0}^{(d)} + \\ & \quad + R_{j_a m_a 0, j_g m_g \lambda, j_a m_a 0, j_g m_g \lambda}^{(d)} \} \varrho_{m_a 0}(t=0). \end{aligned} \quad (60)$$

Von nun an dürfen wir die Quantenzahlen j_a und j_g dort weglassen, wo die Kernzustände durch die Indizierung der m 's bereits charakterisiert sind. Für die Diagonalelemente der Resolventen, die wir verkürzt durch zwei Indexpaare kennzeichnen, erhalten wir nach (35)

$$R_{m_a 0, m_g \lambda}^{(d)} = \frac{1}{p + i\omega_{m_a 0, m_g \lambda} + \Gamma/2 + iM_{m_a 0, m_g \lambda, m_a 0, m_g \lambda}} \quad (61)$$

Bevor wir für den durch (43) definierten Wechselwirkungsoperator $M(p)$ die Matrixdarstellung explizit angeben, wenden wir uns der Frage zu, wie mit Hilfe von (60) der für das Frequenzspektrum der emittierten γ -Strahlen wesentliche Ausdruck (22) möglichst einfach berechnet werden kann. Der direkte Weg wäre, wie bei der Theorie der natürlichen Linienbreiten, durch Umkehrung von (60) einen für große Zeiten gültigen Näherungsausdruck auszurechnen und den in (22) angegebenen Grenzübergang anzuschließen. Wir gehen hier einen anderen, sehr viel kürzeren Weg. Er beruht auf der Anwendung des folgenden Abelschen Grenzwertsatzes [21]:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \frac{f(t)}{t} = \lim_{p \rightarrow 0} p^2 f(p),$$

d. h., existiert der linksstehende Grenzwert, dann läßt er sich durch den angegebenen Grenzprozeß im Bildraum berechnen. An Stelle von (22) haben wir wegen $\varrho_{m_g \lambda}(t=0) = 0$ und (60) nur

$$\begin{aligned} w(\mathbf{k}, \sigma) &= \sum_{m_a, m_g} |\langle j_g m_g; \lambda | H_{\gamma K} | j_a m_a; 0 \rangle|^2 \varrho_{m_a 0}(t=0) \\ & \quad \times \{ R_{m_a 0, m_g \lambda}^{(d)}(0) + R_{m_g \lambda, m_a 0}^{(d)}(0) \} \end{aligned} \quad (62)$$

zu berechnen, um das Endresultat zu erhalten.

Die Berechnung der Matrixelemente von $M(p)$ ist etwas langwierig, aber sehr direkt. Wie (43) zeigt, brauchen wir dazu die Matrixelemente der in (37) und

(38) definierten Liouvilleoperatoren $L_q^{(k)}$ und $L_q^{(+)}$. Die vollindizierten Operatoren

$$\begin{aligned} \left(L_{\substack{(+ \\ q}}^{(k)} \right)_{jm\lambda j'm'\lambda', j_1m_1\lambda_1 j_2m_2\lambda_2} &= \langle jm; \lambda | T_q^{(k)} | j_1m_1; \lambda_1 \rangle \delta_{j'm'\lambda', j_2m_2\lambda_2} \\ &\quad \overline{(+)} \delta_{j_1m_1\lambda_1, jm\lambda} \langle j_2m_2; \lambda_2 | T_q^{(k)} | j'm'; \lambda' \rangle \end{aligned}$$

lassen sich durch die magnetischen Quantenzahlen ausreichend charakterisieren. Nach der Definition (4) des Wechselwirkungsoperators H_{RK} wirken die $T_q^{(k)}$ auf das Kernsystem und sind überdies bis auf konstante Faktoren reine Spinfunktionen, z. B. ist bei der magnetischen Dipolwechselwirkung (s. auch (57a)) $T_q^{(1)} \sim j_q$. Deshalb gilt

$$\begin{aligned} \left(L_{\substack{(+ \\ q}}^{(k)} \right)_{jm\lambda j'm'\lambda', j_1m_1\lambda_1 j_2m_2\lambda_2} &= \delta_{jj_1} \delta_{j'j_2} \delta_{\lambda\lambda_1} \delta_{\lambda'\lambda_2} \{ \langle jm | T_q^{(k)} | j_1m_1 \rangle \delta_{m'm_2} \\ &\quad \overline{(+)} \delta_{m_1m} \langle j'm_2 | T_q^{(k)} | j'm'; \lambda' \rangle \}, \end{aligned} \quad (63)$$

wodurch sich die Zahl der Summationszeiger in (43) erheblich verringern wird. Wegen (63) ist z. B.

$$\begin{aligned} \left(L_q^{(k)} \frac{1}{p + i\omega + iL_0} L_q^{(k')} \right)_{j_a m_a 0 j_g m_g \lambda, j_a m_a 0 j_g m_g \lambda} &= \sum_{j'm', \lambda'} \sum_{j''m'', \lambda''} \quad (64) \\ &= \sum_{m', m''} \left(L_q^{(k)} \right)_{j_a m_a 0 j_g m_g \lambda, j_a m' 0 j_g m'' \lambda} \frac{1}{p + i\omega + i\omega_{j'm', \lambda', j''m'', \lambda''}} \left(L_q^{(k')} \right)_{j'm', \lambda' j''m'', \lambda''} \\ &= \sum_{m', m''} \left(L_q^{(k)} \right)_{j_a m_a 0 j_g m_g \lambda, j_a m' 0 j_g m'' \lambda} \frac{1}{p + i\omega + i\omega_{j_a m' 0, j_g m'' \lambda}} \left(L_q^{(k')} \right)_{j_a m' 0 j_g m'' \lambda, j_a m_a 0 j_g m_g \lambda} \end{aligned}$$

Die Spinquantenzahlen werden überflüssig, wenn wir $m' \rightarrow m'_a$ und $m'' \rightarrow m'_g$ setzen. Mit der Abkürzung

$$\Omega_{m'_a 0, m'_g \lambda} = \frac{1}{p + i\omega + i\omega_{m'_a 0, m'_g \lambda}} \quad (65)$$

folgt für den Diagonaleil von (43)

$$\begin{aligned} (iM(p))_{m_a 0 m_g \lambda, m_a 0 m_g \lambda} &= \frac{1}{\pi} \sum_{k,q} \sum_{k',q'} \sum_{m'_a, m'_g} \left(L_q^{(k)} \right)_{m_a m_g, m'_a m'_g} \\ &\times \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \left\{ J_{kq}^{k'q'}(\omega) \left(L_q^{(k')} \right)_{m'_a m'_g, m_a m_g} + K_{kq}^{k'q'}(\omega) \left(L_{\substack{(+ \\ q}}^{(k')} \right)_{m'_a m'_g, m_a m_g} \right\} \\ &\quad \times \Omega_{m'_a 0, m'_g \lambda}(\omega). \end{aligned}$$

Die Summen über m'_a und m'_g lassen sich sofort ausführen, wenn man (63) benutzt und bedenkt, daß die Matricelemente $\langle jm | T_q^{(k)} | j'm' \rangle$ nur dann von Null verschieden sind, wenn die Auswahlregel $m = q + m'$ erfüllt ist. Die Ausrechnung ergibt z. B.

$$\begin{aligned}
 (iM(p))_{m_a0, m_g\lambda} = & \frac{1}{\pi} \sum_{k,q} \sum_{k',q'} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \{ [(J_{kq}^{k'q'} + K_{kq}^{k'q'}) \Omega_{m_a - q0, m_g\lambda} \\
 & \times \langle j_a m_a | T_q^{(k)} | j_a m_a - q \rangle \langle j_a m_a + q' | T_{q'}^{(k')} | j_a m_a \rangle \\
 & + (J_{kq}^{k'q'} - K_{kq}^{k'q'}) \Omega_{m_a0, m_g + q\lambda} \langle j_g m_g | T_q^{(k)} | j_g m_g - q' \rangle \langle j_g m_g + q | T_{q'}^{(k')} | j_g m_g \rangle] \\
 & - \delta_{q0} \delta_{q'0} [(J_{kq}^{k'q'} + K_{kq}^{k'q'}) \Omega_{m_a0, m_g\lambda} \langle j_g m_g | T_0^{(k)} | j_g m_g \rangle \langle j_a m_a | T_0^{(k')} | j_a m_a \rangle \\
 & + (J_{kq}^{k'q'} - K_{kq}^{k'q'}) \Omega_{m_a0, m_g\lambda} \langle j_a m_a | T_0^{(k)} | j_a m_a \rangle \langle j_g m_g | T_0^{(k')} | j_g m_g \rangle] \},
 \end{aligned} \quad (66)$$

und wir sehen, daß die erste eckige Klammer unter dem Integralzeichen nur für $q' = -q$ einen Beitrag liefert. Bisher haben wir noch nicht unsere Voraussetzung benutzt, daß die Wechselwirkung mit der Umgebung magnetischen Ursprungs sein soll, d. h. $k = k' = 1$ ist. Verwenden wir diese Beschränkung, so vereinfacht sich (66) zu¹⁾

$$\begin{aligned}
 (iM(p))_{m_a0, m_g\lambda} = & \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \left\{ \sum_{q=-1}^{+1} (-)^q \left[(J_{1q}^{1\bar{q}} + K_{1q}^{1\bar{q}}) \Omega_{m_a - q0, m_g\lambda} \right. \right. \\
 & \times \left(\begin{array}{cc} j_a & 1 & j_a \\ -m_a & q & m_a - q \end{array} \right)^2 |\langle j_a || T^{(1)} || j_a \rangle|^2 \\
 & + (J_{1q}^{1\bar{q}} - K_{1q}^{1\bar{q}}) \Omega_{m_a0, m_g + q\lambda} \left(\begin{array}{cc} j_g & 1 & j_g \\ -m_g & -q & m_g + q \end{array} \right)^2 |\langle j_g || T^{(1)} || j_g \rangle|^2 \Big] \\
 & - 2 J_{10}^{10} \Omega_{m_a0, m_g\lambda} (-)^{j_a - m_a + j_g - m_g} \left(\begin{array}{cc} j_g & 1 & j_g \\ -m_g & 0 & m_g \end{array} \right) \left(\begin{array}{cc} j_a & 1 & j_a \\ -m_a & 0 & m_a \end{array} \right) \\
 & \times \langle j_a || T^{(1)} || j_a \rangle \langle j_g || T^{(1)} || j_g \rangle \Big\}.
 \end{aligned} \quad (67)$$

Zur Umformung von (66) in (67) benutzen wir das Wigner-Eckart-Theorem [13]:

$$\langle j m | T_q^{(k)} | j m' \rangle = (-)^{j-m} \begin{pmatrix} j & k & j \\ -m & q & m' \end{pmatrix} \langle j || T^k || j \rangle. \quad (68)$$

Die reduzierten Matricelemente $\langle j || T^{(k)} || j \rangle$ lassen sich in unserem Falle durch die Kernmomente ausdrücken. Speziell für $k = 1$ verwenden wir dazu die Definition (57 b) in der Form

$$\mu_j = \begin{pmatrix} j & 1 & j \\ -j & 0 & j \end{pmatrix} \langle j || T^{(1)} || j \rangle = \frac{j}{\sqrt{(2j+1)(j+1)j}} \langle j || T^{(1)} || j \rangle. \quad (69)$$

Die uns interessierenden, in (68) bzw. (69) auftretenden 3- j -Symbole sind tabelliert [22].

Die Anwendung von (67) ergibt:

¹⁾ Nimmt man an, daß die Störungen durch magnetische Dipol- und elektrische Quadrupolwechselwirkung nicht korreliert sind $J_{kq}^{k'q'} = J_{kq}^{k'q'} \delta_{kk'}$ (analog für K), dann gilt ebenfalls eine Gleichung der Struktur von (67). Man muß lediglich die Terme mit $k = 2$ hinzuzählen und anschließend über q summieren.

²⁾ Zur Vereinfachung der Schreibweise setzen wir in den Indizes $-q = \bar{q}$.

$$\begin{aligned}
(iM(p))_{m_a0, m_g\lambda} = & \left(\frac{m_a\mu_a}{j_a}\right)^2 \cdot \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{10}^{10}(\omega) + K_{10}^{10}(\omega)}{p + i\omega + i\omega_{m_a0, m_g\lambda}} \\
& + \left(\frac{m_g\mu_g}{j_g}\right)^2 \cdot \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{10}^{10}(\omega) - K_{10}^{10}(\omega)}{p + i\omega + i\omega_{m_a0, m_g\lambda}} \\
& - 2 \left(\frac{m_a\mu_a}{j_a}\right) \left(\frac{m_g\mu_g}{j_g}\right) \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{10}^{10}(\omega)}{p + i\omega + i\omega_{m_a0, m_g\lambda}} \\
& - \frac{(j_a - m_a)(j_a + m_a + 1)\mu_a^2}{2j_a^2} \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{11}^{11}(\omega) + K_{11}^{11}(\omega)}{p + i\omega + i\omega_{m_a+10, m_g\lambda}} + \quad (70) \\
& - \frac{(j_a + m_a)(j_a - m_a + 1)\mu_a^2}{2j_a^2} \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{11}^{11}(\omega) + K_{11}^{11}(\omega)}{p + i\omega + i\omega_{m_a-10, m_g\lambda}} \\
& - \frac{(j_g - m_g)(j_g + m_g + 1)\mu_g^2}{2j_g^2} \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{11}^{11}(\omega) - K_{11}^{11}(\omega)}{p + i\omega + i\omega_{m_a0, m_g+1\lambda}} \\
& - \frac{(j_g + m_g)(j_g - m_g + 1)\mu_g^2}{2j_g^2} \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{11}^{11}(\omega) - K_{11}^{11}(\omega)}{p + i\omega + i\omega_{m_a0, m_g-1\lambda}}
\end{aligned}$$

Die Matricelemente $(iM(p))_{m_g\lambda, m_a0}$ erhält man durch entsprechende Vertauschung der Indizes.

Nach (62) brauchen wir von der Resolvente nur den Grenzwert $p \rightarrow +0$. Der zugehörige Wechselwirkungsoperator $M(+0)$ ist durch

$$M(+0) = \lim_{p \rightarrow +0} M(p)$$

definiert und wegen der speziellen p -Abhängigkeit der in (70) auftretenden Integrale mit Hilfe der Identität

$$\lim_{p \rightarrow +0} \frac{1}{p \pm ix} = \mp i \frac{H W}{x} + \pi \delta(x) \quad (71)$$

leicht hinzuschreiben. Die Anwendung von (71) bewirkt die Zerlegung der komplexen Integrale in Real- und Imaginärteil, da nach (42c) die eingehenden Korrelationsfunktionen alle reell sind. Ein Blick auf die Nenner der Integranden in (70) zeigt, daß nebeneinander zwei Gruppen von Prozessen vorkommen, solche ohne Übergänge zwischen den magnetischen Unterniveaus mit der Resonanzenergie

$$\begin{aligned}\omega_{m_a 0 m_g \lambda} &= E_{j_a m_a} - E_{j_g m_g} - \omega_\lambda = \omega_0 - \left(\frac{m_a \mu_a}{j_a} - \frac{m_g \mu_g}{j_g} \right) B_{\text{eff}} - \omega_\lambda \\ &= \omega_0 + (m_a \omega_B(a) - m_g \omega_B(g)) - \omega_\lambda = \omega_{m_a m_g} = 0\end{aligned}\quad (72)$$

$$\omega_B = -\frac{\mu_j \cdot B_{\text{eff}}}{j} = \text{Larmorfrequenz} \quad (73)$$

ω_0 = energetischer Abstand der Kernniveaus ohne Magnetfeld

und solche, bei denen gerade Übergänge zwischen benachbarten Unterniveaus induziert werden. Dabei tritt dann gerade eine Zusatzenergie ω_B auf, da nach (72)

$$\omega_{m_a \pm 10, m_g \lambda} = \omega_{m_a 0, m_g \lambda} \pm \omega_B(a) \quad (74a)$$

$$\omega_{m_a 0, m_g \pm 1 \lambda} = \omega_{m_a 0, m_g \lambda} \mp \omega_B(g) \quad (74b)$$

ist. Wir werden uns zur Berechnung der Korrelationsintegrale auf den Resonanzfall $\omega_{m_a 0, m_g \lambda} = 0$ beschränken, da wir annehmen wollen, daß die Korrelationsfunktionen langsam veränderliche Funktionen in ω sind. Aus (70) erhalten wir dann

$$\begin{aligned}\gamma(m_a, m_g) &\equiv \text{Re}(iM(+0))_{m_a 0 m_g \lambda} = \text{Re}(iM(+0))_{m_g \lambda m_a 0} \\ &= \left(\frac{m_a \mu_a}{j_a} - \frac{m_g \mu_g}{j_g} \right)^2 J_{10}^{10}(0) \\ &\quad - \frac{(j_g^2 + j_g - m_g^2) \mu_g^2}{j_g^2} J_{11}^{1\bar{1}}(\omega_B(g)) - \frac{m_g \mu_g^2}{j_g^2} K_{11}^{1\bar{1}}(\omega_B(g)) \\ &\quad - \frac{(j_a^2 + j_a - m_a^2) \mu_a^2}{j_a^2} J_{11}^{1\bar{1}}(\omega_B(a)) - \frac{m_a \mu_a^2}{j_a^2} K_{11}^{1\bar{1}}(\omega_B(a))\end{aligned}\quad (75)$$

$$\begin{aligned}\Delta(m_a, m_g) &\equiv Jm(iM(+0))_{m_a 0 m_g \lambda} = -Jm(iM(+0))_{m_g \lambda m_a 0} \\ &= \left[\left(\frac{m_g \mu_g}{j_g} \right)^2 - \left(\frac{m_a \mu_a}{j_a} \right)^2 \right] I_0''(0) \\ &\quad + \frac{(j_a^2 + j_a - m_a^2) \mu_a^2}{j_a^2} I_1''(\omega_B(a)) + \frac{m_a \mu_a^2}{j_a^2} I_1'(\omega_B(a)) \\ &\quad - \frac{(j_g^2 + j_g - m_g^2) \mu_g^2}{j_g^2} I_1''(\omega_B(g)) - \frac{m_g \mu_g^2}{j_g^2} I_1'(\omega_B(g))\end{aligned}\quad (76)$$

mit

$$I'_q(x) = HW \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{J_{1q}^{1\bar{q}}(\omega)}{\omega - x}; \quad I''_q(x) = HW \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{K_{1q}^{1\bar{q}}}{\omega - x} \quad (q = 0, 1). \quad (77)$$

Setzen wir die Zerlegung $(iM(+0))_{m_a 0 m_g \lambda} = \gamma(m_a, m_g) + i\Delta(m_a, m_g)$ in (62) ein, so ergibt sich mit

$$\begin{aligned}w(\mathbf{k}, \sigma) &= \sum_{m_a, m_g} |\langle j_g m_g; 1_{\mathbf{k}\sigma} | H_{\gamma K} | j_a m_a; 0 \rangle|^2 \varrho_{m_a 0}(t=0) \\ &\quad \times \frac{\Gamma + 2\gamma(m_a, m_g)}{(\omega_{m_a m_g} + \Delta(m_a, m_g) - \omega_{\mathbf{k}})^2 + (\Gamma/2 + \gamma(m_a, m_g))^2}\end{aligned}\quad (78)$$

die gesuchte Verallgemeinerung der Beziehung (54), wenn die Wechselwirkung des magnetischen Dipolmoments mit den in der Umgebung erzeugten Magnetfeldern berücksichtigt wird.

V. Diskussion

Zunächst wäre zu sagen, daß die Überlegungen völlig analog für die reine Quadrupolwechselwirkung durchgeführt werden können, wenn wir den axialsymmetrischen Fall behandeln. Der allgemeine Fall ist sehr viel unangenehmer, weil der ungestörte Kern-Hamiltonoperator im elektrischen Feldgradienten nicht mehr diagonalisierbar ist. Dadurch werden zusätzliche Näherungen erforderlich. Die Anzahl der Glieder, die bei der Quadrupolwechselwirkung in die Definitionsgleichungen für die Energieverschiebung und die korrigierte Linienbreite eingehen, wird entsprechend größer. Bisher sind dem Verfasser keine Experimente bekannt, zu deren Deutung *zeitlich schwankende* elektrische Feldgradienten herangezogen worden wären. Es ist deshalb nicht nur aus Gründen der Rechenvereinfachung vernünftig, mit dem einfachsten Beispiel der magnetischen Dipolwechselwirkung anzufangen. Wir sehen an (75) und (76), daß selbst unter der einschränkenden Annahme, den Einfluß der Umgebung störungstheoretisch bis zur zweiten Ordnung in den Störoperatoren zu behandeln, recht komplizierte Ergebnisse herauskommen. Wie wir schon erwähnt haben, sind die einzelnen Beiträge physikalisch anschaulich. In die Korrelationsfunktionen J_{10}^{10} und K_{10}^{10} gehen die z -Komponenten der Magnetfelder, d. h. die Komponenten in Richtung des statischen Feldes ein. Sie führen nicht zu Übergängen zwischen den magnetischen Unterzuständen, beeinflussen jedoch die Larmorfrequenzen. Die Korrelation der zeitabhängigen Larmorfrequenzen modifiziert die Linienform der Spektrallinien. Anders für die Komponenten der Zusatzfelder in der x - y -Ebene ($q = \pm 1$). Der ablaufende Prozeß entspricht dem aus der magnetischen Kernresonanz bekannten Induzieren von Übergängen in senkrecht zu einem konstanten Magnetfeld angelegten magnetischen Drehfeldern geeigneter Frequenz. Da diese Übergänge die Lebensdauer der magnetischen Unterniveaus beeinflussen, verändern sie auch die Linienbreiten der emittierten Spektrallinien.

Das Ergebnis unserer Rechnung ist in den Formeln (75) bis (78) enthalten. Die Auswertung wurde gerade soweit getrieben, wie es ohne nähere Kenntnis der Kernumgebung möglich ist. Explizit angegeben wurde die Abhängigkeit von den Größen des Atomkerns, die für die Analyse eines Mößbauerexperiments wichtig sind (in unserem Beispiel Kernspins j_a, j_g und magnetische Dipolmomente μ_a, μ_g im angeregten Niveau und Grundzustand). Das erste in (75) auftretende, zu $(m_a \mu_a / j_a - m_g \mu_g / j_g)^2$ proportionale Glied wurde auch von Wegener [10] gefunden. An Stelle von $J_{10}^{10}(0)$ tritt bei ihm ein Schwankungsintegral auf, welches von zweiter Ordnung im Zusatzfeld ist. Dies entspricht unserer Näherung, da die zu $J_{10}^{10}(\omega)$ gehörende Fouriertransformierte ebenfalls von zweiter Ordnung in den feldverursachenden Störoperatoren ist. Das Fehlen der anderen Terme, die mit den Schwankungen der senkrecht zur Quantisierungsrichtung orientierten Magnetfelder zusammenhängen, wird aus der „Annahme II“ verständlich, in der Wegener ausdrücklich verlangt, daß der Kernspin nur

die Magnetfeld-Fluktuationen in Richtung des statischen Feldes empfindet. Die von *Wegener* gefundenen Linienverschiebungen sind mit unseren nicht vergleichbar. Dort sind sie mit den dritten Potenzen des fluktuierenden Feldes gekoppelt. Glieder dritter Ordnung haben wir gar nicht betrachtet, die Linienverschiebungen (76) treten ebenfalls im Rahmen der Störungstheorie zweiter Ordnung auf.

Aus der Definition der Korrelationsfunktionen (42) wissen wir, daß sie im allgemeinen von der Temperatur und gegebenenfalls dem äußeren Magnetfeld B abhängig sein werden. Die Berechnung der Korrelationsfunktionen erfordert zusätzliche Annahmen über Art und Eigenschaft der Kernumgebung. Dieses im wesentlichen elektronische Problem läßt sich physikalisch befriedigend und gezielt nur für konkrete Mößbauerexperimente anpacken. In dem Ausdruck (75) für die Linienbreite läßt sich ohne Kenntnis der Korrelationsfunktionen fast immer folgende Vereinfachung anbringen. Nach (42d) ist $K_{1q}^{1q}(\omega_B)$ proportional $J_{1q}^{1q}(\omega_B)$. Der Faktor $\tanh(\beta\omega_B/2)$ ist — ausgenommen extrem tiefe Temperaturen — sogar für effektive Magnetfelder in der Größenordnung von einigen Megagauß klein gegen eins, folglich können die Glieder mit $K_{1q}^{1q}(\omega_B)$ gestrichen werden¹⁾.

Die Formel (78) zeigt, daß die Emissionswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für ein γ -Quant bestimmter Ausbreitungsrichtung \mathbf{k} und Polarisation σ in bekannter Weise als Summe aller durch die Auswahlregeln für elektromagnetische Strahlungsübergänge zugelassenen Beiträge herauskommt. Die Intensität ist durch das Quadrat des Übergangsmatrixelements bestimmt. In unserer Näherung besitzt jede Hyperfeinstrukturlinie Lorentzform. Bedingt durch das Aufsuchen der zeitlich-asymptotischen Lösung werden Meßdauern $t \gg 1/\Gamma$, $1/\gamma$ gefordert.

VI. Zusammenfassung

Der Einfluß zeitlich-fluktuierender magnetischer Felder und elektrischer Feldgradienten auf die Hyperfeinaufspaltung der Mößbauerstrahlung wird untersucht. Die Überlegungen gelten für die Klasse von Experimenten, in denen die Umgebung des Atomkerns als Wärmebad wirkt und Ursache für die Entstehung effektiver *klassischer* Felder ist. Zur Lösung des Prozesses der spontanen Emission in einem entarteten Zweiniveausystem wird der Formalismus der Liouville-Operatoren benutzt. In zwei Schritten wird die Dichtematrix des Gesamtsystems „Kern + Strahlungsfeld + Umgebung“ so reduziert, daß ein Ausdruck für die Diagonalelemente der Dichtematrix für Kern und γ -Strahlung übrigbleibt. Über die physikalische Beschaffenheit der Kernumgebung werden keine speziellen Voraussetzungen gemacht. Deren Existenz findet sich in Korrelationsfunktionen bezüglich der felderzeugenden Störoperatoren wieder. Der Fall der magnetischen Dipolwechselwirkung in einem durch die magnetischen Dipolmomente und Kernspins charakterisierten Zweiniveausystem wird explizit behandelt. Die zeitlich-asymptotische Lösung, die für Meßdauern $t \gg 1/\Gamma$,

¹⁾ Für ein magnetisches Moment vom Betrage eines Kernmagnetons ist mit $j = 1$ im Felde von 1 MG: $\mu_k B_{\text{eff}} = 5,05 \cdot 10^{-24} \cdot 10^6 [\text{erg}] = 5,05 \cdot 10^{-18} [\text{erg}]$. Bei $T = 4,2 \text{ }^\circ\text{K}$ ist dann $\beta\omega_B/2 = \mu_k B_{\text{eff}}/2kT = 5,05 \cdot 10^{-18}/2 \cdot 5,8 \cdot 10^{-16} = 4,35 \cdot 10^{-3}$.

$1/\gamma$ gilt, führt auf eine Überlagerung frequenzverschobener Lorentzlinien mit modifizierter Linienbreite. Frequenzverschiebung Δ und zusätzliche Linienbreite γ der einzelnen Hyperfeinlinien sind explizit bekannte Funktionen der Kernspins, magnetischen Quantenzahlen und magnetischen Dipolmomente und hängen über die Feldkorrelationsfunktionen von der Umgebung ab.

VII. Anhang

A. Die Vertauschbarkeit des Projektionsoperators P mit L' ist nach (12) und (16a) trivial, da L' von Reservoirvariablen gar nicht mehr abhängt. Da die dritte Beziehung (17) aus der zweiten folgt, brauchen wir nur diese zu beweisen. Für jeden Operator $X(R, K)$ aus $\mathfrak{R} \otimes \mathfrak{R}$ gilt wegen $L_R \varrho_T(R) = 0$ und $P \Delta L_{RK} = 0$:

$$\begin{aligned} PL''PX(R, K) &= \varrho_T(R) \text{Tr}_R \{L_R + L_{RK} - \langle L_{RK} \rangle_R\} \varrho_T(R) (\text{Tr}_R X(R, K)) \\ &= \varrho_T(R) \{ \text{Tr}_R (L_{RK} \varrho_T(R)) - \langle L_{RK} \rangle_R \} (\text{Tr}_R X(R, K)) = 0. \end{aligned}$$

B. Die Beziehung $DL'D = 0$ gilt unabhängig von der zur Matrixdarstellung benutzten Basis für beliebige Liouvilleoperatoren L' . Das folgt aus der Definition des Projektionsoperators D [14]

$$D_{kl, mn} = \delta_{kl} \delta_{km} \delta_{ln}$$

unter Verwendung von (7):

$$(DL'D)_{kl, mn} = \sum_{r, s, v, w} D_{kl, rs} L'_{rs, vw} D_{vw, mn} = \delta_{kl} L'_{kk, mm} \delta_{mn} = 0.$$

Die Identität (29) gilt nur in der Eigendarstellung des zu L_0 gehörigen Hamiltonoperators H_0 , da

$$(DL_0)_{ab, cd} = \delta_{ab} (L_0)_{aa, cd} = \delta_{ab} \{ (H_0)_{ac} \delta_{ad} - \delta_{ca} (H_0)_{da} \} = 0$$

nur, wenn $(H_0)_{ac} = E_a \delta_{ac}$. Man muß also beachten, daß die Benutzung von (29) schon auf eine spezielle Wahl der Basis hinausläuft, selbst wenn formal der Operatorkalkül weiter verwendet wird.

C. Zum Beweis der in (31) benutzten Identität machen wir den Ansatz

$$\frac{1}{p + i(1-D)\Omega} = \left\{ (1-D) \frac{1}{p + i\Omega} + \frac{D}{p} \right\} \frac{1}{1 + \Delta}$$

und bestimmen Δ durch Auflösen der Operatorgleichung

$$\begin{aligned} (1 + \Delta) (p + i\Omega) &= \{p + i(1-D)\Omega\} (1-D) \\ &\quad + \frac{1}{p} \{p + i(1-D)\Omega\} D(p + i\Omega) \end{aligned}$$

mit dem Resultat

$$\Delta = -\frac{1}{p} (1-D) \Omega D \Omega \frac{1}{p + i\Omega}.$$

Der in der geschweiften Klammer stehende Ausdruck ergibt sich unter der Annahme, daß der Projektionsoperator $(1-D)$ mit Ω vertauschbar ist, deshalb die spezielle Form des obigen Ansatzes.

D. Einen analytischen (d. h. ohne Diagrammtechnik formulierten) Beweis für die Entwicklung und Umformung der Resolvente $(\Omega + A)^{-1}$ gibt *Praddaude* [23]. Wir schreiben sein Resultat auf, um deutlich zu machen, wie die Näherungsausdrücke (35) und (36a) zustande kommen. Ω besitze nach Voraussetzung nur einen Diagonalteil, d. h. $\Omega = \Omega^{(d)}$, nicht aber A , so daß wir zerlegen müssen:

$$A = A^{(d)} + A^{(nd)} \equiv A^{(d)} + V.$$

Für die in Diagonal- und Nichtdiagonalteil aufgespaltene Resolvente

$$R = \frac{1}{\Omega + A} = R^{(d)} + R^{(nd)}$$

gilt nach *Praddaude*

$$R^{(d)} = \frac{1}{\Omega + A^{(d)} - G^{(d)}}; \quad R^{(nd)} = R^{(d)} [-V + G^{(nd)}] R_0$$

mit

$$R_0 = \frac{1}{A^{(d)} + \Omega}$$

$$G^{(nd)} = (V R_0 V)^{(nd)} - ((V R_0 V)^{(nd)} R_0 V)^{(nd)} + (((V R_0 V)^{(nd)} R_0 V)^{(nd)} R_0 V)^{(nd)} \mp \dots$$

$$G^{(d)} = (V R_0 V)^{(d)} - ((V R_0 V)^{(nd)} R_0 V)^{(d)} + (((V R_0 V)^{(nd)} R_0 V)^{(nd)} R_0 V)^{(d)} \mp \dots$$

In unserem Falle ist $A^{(nd)} = V \equiv i M^{(nd)} + L_{\gamma k}$, $\Omega \equiv p + i L_0$ und $A^{(d)} \equiv i M^{(d)}$. Da (30) schon von zweiter Ordnung in $L_{\gamma k}$ ist, dürfen wir in der Resolventenentwicklung nach dem Störoperator A den nichtdiagonalen Anteil von R streichen und uns bei $G^{(d)}$ auf das erste Glied beschränken.

Herr Prof. Dr. *M. Kohler* hat in großzügiger Weise über viele Jahre hinweg dem Assistenten ein ungehindertes wissenschaftliches Arbeiten ermöglicht und sich menschlichen und fachlichen Problemen stets aufgeschlossen gezeigt. Dafür möchte ich an dieser Stelle ausdrücklich danken.

Durch seinen im Mai 1965 in Braunschweig gehaltenen Kolloquiumsvortrag hat mich Herr Prof. Dr. *H. Wegener* zu der vorliegenden Arbeit angeregt. Ich verdanke ihm ein aufschlußreiches Gespräch und die Überlassung eines damals unveröffentlichten Manuskripts. Mein Dank gilt schließlich Herrn Priv.-Doz. Dr. *L. J. Weigert*, Herrn Dr. *K.-L. Chao* und Herrn Dipl.-Phys. *H.-G. Junginger* für zahlreiche Diskussionsbeiträge.

Literatur

- [1] *H. Frauenfelder*: The Mössbauer Effect. W. A. Benjamin, Inc., New York 1962.
- [2] *G. K. Wertheim*: Phys. Rev. Letters **4**, 403 (1960).
- [3] *F. van der Woude* und *A. J. Dekker*: phys. stat. sol. **9**, 775 (1965).
- [4] *H. Wegener*: Der Mössbauer-Effekt und seine Anwendung in Physik und Chemie. Bibliographisches Institut, Mannheim 1965.
- [5] *G. K. Wertheim*: Mössbauer Effect: Principles and Applications. Academic Press, New York and London 1965.

- [6] Proc. 2nd. Intern. Conf. Mössbauer Effect, Saclay, France 1961 (Wiley, New York 1962).
- [7] Third Intern. Conf. on the Mössbauer Effect. Revs. Mod. Phys. **36**, 333 (1964).
- [8] *M. Blume*: Phys. Rev. Letters **14**, 96 (1965).
- [9] *A. J. Boyle und J. R. Gabriel*: Physics Letters **19**, 451 (1965).
- [10] *H. Wegener*: Z. Physik **186**, 498 (1965).
- [11] *E. Bradford und W. Marshall*: Proc. Phys. Soc. **87**, 731 (1966).
- [12] *F. E. Obenshain et al.*: Phys. Rev. Letters **14**, 365 (1965).
- [13] *A. Messiah*: Quantum Mechanics, Vol. II. North Holland Publ. Company, Amsterdam 1962.
- [14] *R. Zwanzig*: in Lectures in Theoretical Physics, Vol. III, University of Colorado, Boulder 1960, Interscience Publishers New York 1961. Physica **30**, 1109 (1964).
- [15] *R. K. Wangsness und F. Bloch*: Phys. Rev. **89**, 728 (1953).
- [16] *P. S. Hubbard*: Revs. Mod. Phys. **33**, 249 (1961).
- [17] *H. Primas*: Helv. Phys. Acta **34**, 331 (1961).
- [18] *U. Fano*: Phys. Rev. **131**, 259 (1963).
- [19] *F. Coester*: Phys. Rev. **93**, 1304 (1954).
- [20] *W. Heitler*: Quantum Theory of Radiation. Clarendon Press, Oxford 1957, S. 181.
- [21] *D. Doetsch*: Handbuch der Laplace-Transformationen. Verlag Birkhäuser Basel 1950. Bd. I, 13. Kap.
- [22] *A. R. Edmonds*: Drehimpulse in der Quantenmechanik. Bibliographisches Institut, Mannheim 1964. S. 149 ff.
- [23] *H. C. Praddaude*: Ann. Phys. **22**, 210 (1963).